

Стефан А. Майер

Плазмоника

Теория и приложения

R&C
Dynamics

R&C
Dynamics

PLASMONICS: FUNDAMENTALS AND APPLICATIONS

STEFAN A. MAIER

*Centre for Photonics and Photonic Materials
Department of Physics, University of Bath, UK*

 Springer

Стефан А. Майер

ПЛАЗМОНИКА

ТЕОРИЯ И ПРИЛОЖЕНИЯ

Перевод с английского
Т. С. Нечаевой, Ю. В. Колесниченко

Под редакцией
С. С. Савинского



Москва ♦ Ижевск

2011

ББК 22.314 + 22.31

УДК 530.1

М14

Интернет-магазин

MAIERS

<http://shop.rcd.ru>

- физика
 - математика
 - биология
 - нефтегазовые технологии
-

Маьер С. А.

Плазмоника: теория и приложения. — М.–Ижевск: НИЦ «Регулярная и хаотическая динамика», 2011. — 296 с.

В книге достаточно полно изложена история развития плазмоники. Она предназначена как для студентов, имеющих общие представления о теории электромагнетизма и прикладной оптике и желающих начать собственные исследования в данной сфере, так и для научных работников, для которых эта книга, возможно, станет настольным справочником. Первая часть данного издания представляет собой введение в плазмонику, начиная с элементарного описания классического электромагнетизма, причем особое внимание уделяется проводящим материалам. В последующих главах обсуждаются поверхностные плазмон-поляритоны и локализованные плазмоны в наноструктурах в видимой части спектра, а также поверхностные электромагнитные волны. Во второй части книги рассматриваются вопросы практического применения теории для разнообразных приложений, например, для создания плазменных волноводов, апертурных решеток для усиления света. В заключении дается краткое описание свойств нового класса сред — метаматериалов.

ISBN 978-5-93972-875-1

ББК 22.314 + 22.31

Translation from the English language edition:

Plasmonics: Fundamentals and Applications by Stefan A. Maier

© Springer Science + Business Media LLC, 2007. All rights are reserved.

© Перевод на русский язык:

НИЦ «Регулярная и хаотическая динамика», 2011

<http://shop.rcd.ru>

Оглавление

Предисловие редактора перевода	ix
Предисловие	xi
Введение	xv
Благодарность	xvii
ЧАСТЬ I. ОСНОВЫ ПЛАЗМОНИКИ	1
Введение	3
ГЛАВА 1. Электромагнитные свойства металлов	4
1.1. Уравнения Максвелла и распространение электромагнитных волн	4
1.2. Диэлектрическая проницаемость газа свободных электронов	10
1.3. Дисперсионные соотношения для объемных плазмонов в приближении газа свободных электронов	15
1.4. Межзонные переходы в металлах	18
1.5. Плотность энергии электромагнитного поля в металлах	20
ГЛАВА 2. Поверхностные плазмон-поляритоны на границе раздела металл-диэлектрик	22
2.1. Волновое уравнение	22
2.2. Поверхностные плазмон-поляритоны на одиночных границах раздела	26
2.3. Многослойные системы	32
2.4. Удержание энергии и эффективная длина волны	37
ГЛАВА 3. Возбуждение поверхностных плазмон-поляритонов на плоских границах раздела сред	41
3.1. Возбуждение пучком заряженных частиц	42
3.2. Призмный ввод	44
3.3. Решеточный ввод	48

3.4. Возбуждение с использованием фокусированных оптических пучков	51
3.5. Возбуждение в ближнем поле	53
3.6. Схемы связи, подходящие для объединения с традиционными фотонными элементами	55
ГЛАВА 4. Способы визуализации поверхностного плазмон-поляритона	58
4.1. Микроскопия ближнего поля	58
4.2. Флуоресцентное изображение	62
4.3. Излучение дифракционных потерь	65
4.4. Изображение рассеянного светового излучения	69
ГЛАВА 5. Локализованные поверхностные плазмоны	73
5.1. Нормальные моды электромагнитного поля в металлических частицах	74
5.2. Теория Ми	82
5.3. За пределами квазистатической аппроксимации и времени жизни плазмона	82
5.4. Наблюдение плазмонов в частицах	88
5.5. Связь между локализованными плазмонами	91
5.6. Плазмоны в нановключениях и металлических нанооболочках	97
5.7. Локализованные плазмоны в усиливающей среде	99
ГЛАВА 6. Электромагнитные поверхностные моды на низких частотах	102
6.1. Поверхностные плазмон-поляритоны при терагерцевых частотах	103
6.2. Ложные поверхностные плазмон-поляритоны на гофрированных поверхностях	108
6.3. Поверхностные фонон-поляритоны	117
ЧАСТЬ II. ПРИЛОЖЕНИЯ	123
Введение	125
ГЛАВА 7. Плазмонные волноводы	126
7.1. Планарные элементы для управления распространением поверхностных плазмон-поляритонов	127
7.2. Структура запрещенных зон для поверхностных плазмон-поляритонов	132

7.3.	Распространение поверхностных плазмон-поляритонов вдоль металлических полос	135
7.4.	Металлические нанопровода и конические волокна для эффективной передачи и фокусирования волн	146
7.5.	Моды, локализованные в зазорах и канавках	152
7.6.	Металлические наночастичные волноводы	154
7.7.	Преодоление потерь за счет использования усиливающих сред	163
ГЛАВА 8.	Прохождение излучения сквозь отверстия и пленки	167
8.1.	Теория дифракции на субволновых отверстиях	167
8.2.	Прохождение света сквозь субволновые апертуры	171
8.3.	Направленное излучение за счет структурирования выходной стороны экрана	178
8.4.	Локализованные поверхностные плазмоны и светопропускание сквозь одиночные апертуры	182
8.5.	Практические применения экстраординарного пропускания	187
8.6.	Светопропускание сквозь неперфорированную пленку	188
ГЛАВА 9.	Излучение и нелинейность	190
9.1.	Основы SERS	190
9.2.	SERS и усиление поля резонатора	194
9.3.	Геометрии SERS	197
9.4.	Усиление флуоресценции	203
9.5.	Люминесценция металлических наноструктур	208
9.6.	Усиление нелинейных процессов	209
ГЛАВА 10.	Спектроскопия и сенсорные измерения	212
10.1.	Одночастичная спектроскопия	213
10.2.	Сенсоры на базе поверхностных плазмон-поляритонов	226
ГЛАВА 11.	Метаматериалы, получение изображений с помощью поверхностных плазмон-поляритонов	233
11.1.	Метаматериалы и отрицательный показатель преломления на оптических частотах	234
11.2.	Идеальная линза, получение изображений и литография	240
ГЛАВА 12.	Заключение	244
Литература		245
Предметный указатель		274

Предисловие редактора перевода

Взаимодействие электромагнитной волны с границей раздела сред является классической задачей и обсуждается практически во всех учебниках по электродинамике сплошных сред в связи с анализом поляризации и интенсивности отраженной и прошедшей волн в задаче преломления. Однако вопросы поверхностных электромагнитных волн и практического их использования, несмотря на многочисленные исследования, слабо отражены в отечественной учебной литературе. Уже достаточно давно вышла обстоятельная книга «Поверхностные поляритоны» (Под редакцией В. М. Агроновича, Д. Л. Милса. — М.: Наука, 1985), в которой последовательно обсуждены методы оптической спектроскопии, основанные на использовании поверхностных поляритонов и предназначенные для исследования поверхностей, тонких пленок и границ раздела сред. За прошедшие 25 лет в научной литературе накопилось много теоретических, экспериментальных и технологических данных в сформировавшейся области знаний плазмонике и ее направления — нанофотонике. Следует отдельно указать на интенсивно изучаемые в последнее время метаматериалы, которые могут составить основу для создания совершенных оптических приборов. Заметим, в нашей стране профессор В. Г. Веселаго еще в 60-х годах прошлого столетия начал теоретически изучать среды с отрицательным коэффициентом преломления, в его терминологии — «левые среды», впоследствии получившие название метаматериалов. Сегодня это очень перспективное, активно разрабатываемое технологическое направление. К сожалению, автор книги «Плазмоника: теория и приложения» не указал ссылку на пионерскую работу В. Г. Веселаго «Электродинамика веществ с одновременно отрицательными значениями ϵ и μ » (Успехи физических наук, 1967. Т. 92. Вып. 3. С. 517–526), подобные работы на Западе стали объектом внимания только в последние 10–15 лет.

Несомненно, предлагаемая книга найдет своего читателя, которым может стать студент, преподаватель университета, научный сотрудник, инженер-технолог. Материал книги содержит необходимые теоретические, экспериментальные и технологические разделы с большим числом приложений, иллюстраций и цитированной литературы.

С. С. Савинский
УдГУ

Предисловие

Поверхностные плазмоны стали объектом моего научного исследования при выполнении дипломной работы в 1982 году. Тогда я не предполагал, что эта тема будет актуальна для меня практически четверть века спустя и станет делом всей моей жизни. Время летит быстро. Предложение написать введение к данной книге с обязательным включением исторической перспективы заставило меня вспомнить о моем первом знакомстве с проблемой поверхностных плазмонов. Руководителем моего дипломного проекта был Рой Самблес — в то время я совсем не осознавал, как мне повезло с руководителем. Область науки, связанная с поверхностными плазмонами, значительно изменилась в последние годы, в новом ее виде — плазмонике, все большее количество исследователей присоединяется к данному направлению.

С чего же начать новичку в этой области? Хорошая книга может стать и советчиком, и другом — сделать доброе дело. Когда я начинал в 1982 году, самой современной книгой на тот момент был сборник «Электромагнитные поверхностные волны» под редакцией Алана Бордмана. Мы с Кевином Велфордом вошли в группу, возглавляемую Роем Самблесом, с целью работы над докторскими диссертациями — как начинающие мы сочли эту книгу достаточно тяжелой, но все-таки ценным источником — мы «зачитали» ее, и вскоре обложка протерлась, и практически на всех страничках появились закладки в виде загнутых уголков. Я перестал заниматься плазмоникой в 1986 году, и не возвращался к этой проблеме вплоть до 1992 года. За это время Ханс Райзер опубликовал книгу «Поверхностные плазмоны». С его замечательной комбинацией простоты и способности проникнуть в суть, особенно во вступительных разделах, появилась классическая книга. Сейчас, практически двадцать лет спустя, эта книга широко используется, но неизбежно материал книги стареет, поскольку данная область продолжает стремительно расширяться. Появились специальные работы, возникла необходимость в более современном введении и обзоре в данной области. Теперь они у нас есть — благодаря Стефану Майеру.

Но что такое плазмоника? У Вас есть уравнения Максвелла, свойства материалов и граничные условия, полный классический набор — в чем но-

визна? Могли бы Вы предположить, что композитный материал, содержащий металлические включения, может перевернуть закон Снеллиуса с ног на голову? Или что Вы сможете локализовать свет в области размером менее одной сотой длины волны? Никаких новых фундаментальных частиц, никакой новой космологической теории, но сюрпризы, авантюра, поиски с целью понять — да, у нас есть все это, и даже больше.

На сегодняшний день в основе плазмоники лежит четыре положения. Во-первых, это доступность современных технологий для изготовления структур (наноструктур). Во-вторых, существует множество высокочувствительных оптических технологий для снятия характеристик, и эта информация доступна. В-третьих, стремительное развитие вычислительных мощностей позволяет нам применять мощные вычислительные средства моделирования, представляющие собой гораздо больше возможностей, чем обыкновенный ноутбук. Тот факт, что многие исследователи могут получить доступ ко всем этим средствам, дает возможность расширения области плазмоники.

Четвертый элемент, возможно, будет раскритикован циниками, однако недостающим из вышеперечисленных пунктов является широкий спектр потенциального применения — солнечные элементы, микроскопия высокого разрешения, изготовление медикаментов и многое другое. Я фанат в этом вопросе, но для меня и, я подозреваю, для многих других велика роль воображения, желания открыть что-то новое, объяснить необъяснимое — словом, это просто наука. Удивительно, но существует еще много научных проблем, в которых не нужно наблюдать гравитационные волны, создавать новые конструкции ускорителей частиц и др. Плазмоника — одна из наук, где люди могут сделать интересные и полезные устройства, имея скромные средства, что также является одним из соблазнов.

Этой науке уже сто лет. В течение прошлого века применялись те же четыре приведенных выше элемента — хотя и в другом направлении. Современными средствами для того времени были дифракционные решетки, оптические характеристики обеспечивались теми же решетками — так миру была подарена спектроскопия. Аналитические вычисления были основаны на работе Рэлея по дифракции и на трудах Зеннека и Зоммерфельда по поверхностным волнам, эти работы по-прежнему ценны сегодня. В дополнение ко всему существовало хорошее понимание свойств металлов, в частности благодаря трактовке Друде. Так чего же не хватало? Вероятно, и это наиболее важно, не понималась общность этих разных сфер деятельности в плане изучения поверхностных плазмонов. Сегодня мы находимся в совершенно иной ситуации, многое понимается в иной интерпретации, но по-прежнему мы в ожидании сюрпризов.

Оглядываясь назад, становится ясно, что статья Томаса Эббесена и его коллег в журнале *Nature* (1998) по экстраординарному пропусканию света через металлические сетки втянула в эту область многих. При массовых разработках в широких спектральных диапазонах начиная от микроволн, терагерцового, инфракрасного и видимого излучения и заканчивая ультрафиолетовым диапазоном, необходимость в данной области науки стала действительно насущной. Книга перед Вами, возможно, я не смог выразить свое восхищение в превосходных степенях, но все же книга Стефана Майера дает нам новейшее вступление и прекрасный обзор современной ситуации. Кто знает, какие новые концепции могут возникнуть и в какой сфере они будут применяться? Наверное, никто из нас еще не знает, в этом и вся интрига — им можете стать Вы.

Билл Барнес
Школа физики, Эксетерский Университет
Июнь 2006

Введение

Плазмоника представляет собой современное направление *фотоники*, в которой исследуются условия локализации электромагнитных полей на масштабах порядка длины волны и меньших длины волны. В ее основе — изучение взаимодействия электромагнитного излучения в субволновом масштабе и носителей заряда в зоне проводимости на границах раздела сред.

Исследования в этой области показывают, как может возникать специфическое и часто неожиданное поведение в неоднородных системах или структурах, размер которых меньше длины волны (даже в таких на первый взгляд неперспективных для современных оптических исследований материалах, как металлы!). Еще одна особенность данной области состоит в том, что она прочно опирается на классическую физику, в результате для понимания ее основных аспектов достаточно иметь хорошие знания основ теории электромагнетизма на базовом университетском уровне.

Однако, как показывает изучение истории вопроса, несмотря на то, что два основных компонента плазмоники — *поверхностные плазмон-поляритоны* и *локализованные поверхностные плазмоны* — были поняты еще в 1900 году, зачастую далеко не просто понять природу взаимосвязи многих явлений и практических применений в данной области. Это усложнено еще тем, что на протяжении XX века поверхностные плазмон-поляритоны были заново переоткрыты в ряде различных ситуаций.

Математическое описание поверхностных волн было сделано на рубеже XX века [Sommerfeld, 1899; Zenneck, 1907] в связи с задачей о распространении радиоволны вдоль поверхности проводника, имеющего конечную проводимость. Наблюдаемое аномальное понижение интенсивности в видимой области спектров отражения на металлических дифракционных решетках [Wood, 1902] вплоть до середины XX века [Fano, 1941] не связывалось с предшествующими теоретическими работами. Примерно в то же время при рассеянии электронных пучков на тонких металлических фольгах было обнаружено явление потерь энергии, обусловленное взаимодействиями, происходящими на металлических поверхностях [Ritchie, 1957]. Впоследствии в 1960-х гг. [Ritchie et al., 1968] была выяснена связь этих результатов с экспериментами на дифракционных решетках в видимой области. К тому времени уже было изучено возмущение поверхност-

ных волн, изученных Зоммерфельдом, видимым светом [Kretschmann and Raether, 1968], построено общее описание этих явлений как поверхностных плазмон-поляритонов.

С тех пор исследования в данной области были настолько ограничены видимой областью спектра, что некоторые повторные открытия в микроволновом и терагерцовом диапазонах были сделаны лишь на рубеже XXI века, замыкая круг исходных работ столетней давности. История локализованных поверхностных плазмонов в металлических наноструктурах развивалась более спокойно, начиная с датированного Римской эпохой применения микроскопически малых металлических частиц для окрашивания стекла. Строгие математические основы были заложены в начале XX века [Mie, 1908].

Именно с учетом богатой истории исследований в данной области и была написана эта книга. Она предназначена как для студентов с базовыми университетскими знаниями в области электромагнетизма и прикладной оптики и желающих начать исследование в данном направлении, так и для исследователей, для которых, возможно, она может стать настольным справочником. Этой цели служит подробный справочный раздел книги. Приведенные в книге оригинальные работы были выбраны либо по факту первого описания или первого практического применения рассматриваемого эффекта, либо вследствие высокой педагогической ценности работы. Во многих случаях совершенно очевидно, что можно было бы воспользоваться и другими статьями, однако для некоторых разделов книги пришлось отобрать лишь малое количество работ из множества близких по материалу.

Первая часть книги дает обстоятельное введение в обсуждаемую тему, начиная с элементарного описания классического электромагнетизма, причем особое внимание уделяется описанию проводящих материалов. В последующих главах описываются поверхностные плазмон-поляритоны и локализованные плазмоны в видимом диапазоне спектра, а также низкочастотные электромагнитные поверхностные волны. Во второй части рассматривается практическое применение теоретических результатов, например, для плазмонных волноводов, апертурных решеток для пропускания света, а также для различных геометрических элементов, находящихся на поверхности. Книга завершается кратким описанием метаматериалов, содержащих металлические включения.

Надеюсь, эта книга выполнит свою задачу и станет полезной для настоящих и будущих исследователей данного направления науки, усилит ощущение общности между направлениями в данной области. Буду признателен за комментарии и предложения.

Стефан Майер

Благодарность

Я бы хотел поблагодарить моего коллегу Тима Биркса за его старания при чтении чернового варианта данной книги, а также за его полезную критику, и Дэвида Берда за его содействие данному проекту. Также хочу выразить благодарность студенту Чарльзу де Нобрига за работу над версиями этой книги и, конечно, моей жене Мэг за все приятные мгновения, которые отвлекали меня от работы.

Часть I

ОСНОВЫ ПЛАЗМОНИКИ

Введение

В настоящее время исследования в области плазмоники развиваются достаточно быстро, и можно ожидать, что в ближайшем будущем к этому направлению присоединится большее количество исследователей. С чего начать новичку? Прежде чем погрузиться в специальные области теоретических или прикладных знаний, желательно получить серьезные базовые знания для понимания специальной литературы. Чтение данной книги позволяет закрепить основные знания. В первой главе рассмотрены основы: здесь анализируются оптические свойства металлов, уравнения Максвелла и проведен анализ диэлектрической проницаемости электронной подсистемы. Следующие три главы знакомят с поверхностными плазмон-поляритонами как на границе раздела металлов, так и в многослойных структурах, представлены экспериментальные данные и методы их наблюдений. В пятой главе рассмотрены локализованные поверхностные плазмоны в металлических наноструктурах. Первая часть книги завершается описанием низкочастотных электромагнитных мод, где поверхностные плазмон-поляритоны в металлах являются делокализованными, для создания локализованных волн необходимо применить поверхностное структурирование.

ГЛАВА 1

Электромагнитные свойства металлов

Несмотря на то, что оптические свойства металлов обсуждаются в большинстве учебников по физике конденсированного состояния, для удобства в данной главе приводятся наиболее важные формулы и факты, необходимые для изучения поверхностных плазмон-поляритонов. Начав с повторения уравнений Максвелла, мы определим электромагнитный отклик как идеализированных, так и реальных металлов в широком частотном диапазоне, рассмотрим коллективные возбуждения электронов проводимости в объеме металла: *объемный плазмон*. Глава завершается обсуждением вопросов вычисления плотности энергии электромагнитного поля в средах с дисперсией.

1.1. Уравнения Максвелла и распространение электромагнитных волн

Взаимодействие электромагнитных полей с металлами можно понять в рамках классической физики, базирующейся на уравнениях Максвелла. Даже металлические структуры вплоть до размеров порядка нескольких нанометров можно описать в рамках классической физики, не прибегая к квантовой механике, поскольку из-за высокой плотности свободных носителей заряда интервалы между электронными энергетическими уровнями малы по сравнению с тепловой энергией $k_B T$ для комнатной температуры. Таким образом, рассматриваемая в данной книге электродинамика металлов ограничивается классическими представлениями и позволяет изучить явления, связанные с зависимостью свойств металлов от частоты.

Как известно из эксперимента, в широкой области частот металлы обладают высокой отражательной способностью, электромагнитные волны не проникают в металл. По этой причине металлы традиционно используются в качестве оболочек для создания волноводов и резонаторов электромагнитного излучения на микроволновых частотах. В этом частотном режиме используется приближение *идеальной проводимости* или *приближение*

проводника с бесконечной либо большой проводимостью, поскольку в металл проникает лишь малая часть падающего электромагнитного излучения. При повышении частоты в сторону ближней инфракрасной и видимой части спектра проникновение поля может изменяться, что может привести к увеличению поглощения и изменению в работе соответствующих фотонных устройств. Наконец, на ультрафиолетовых частотах металлы приобретают диэлектрические свойства и допускают распространение электромагнитных волн с различным затуханием — в зависимости от особенностей структуры энергетических зон. Щелочные металлы, такие как натрий, имеют отклик, подобный отклику свободных электронов, и, следовательно, демонстрируют *ультрафиолетовую прозрачность*. В то же время в благородных металлах — золоте и серебре — переходы электронов между энергетическими зонами приводят к сильному поглощению в данном частотном диапазоне.

Дисперсионные свойства металлов можно понять с помощью комплексной диэлектрической проницаемости $\varepsilon(\omega)$, свойства которой лежат в основе всех обсуждаемых в данной книге явлений. Комплексность диэлектрической проницаемости приводит к сдвигу фазы индуцированного тока относительно фазы поля при частотах, близких к обратному значению характерного времени релаксации электронов τ в металлах, что будет обсуждаться в разделе 1.2.

Для описания оптических свойств металлов вспомним *макроскопические уравнения Максвелла*, с помощью которых можно провести исследование. Преимущество этого макроскопического *феноменологического подхода* позволяет нам не принимать во внимание фундаментальное взаимодействие между электромагнитным полем и отдельными заряженными частицами внутри среды, так как в данном приближении быстро изменяющиеся микроскопические поля усредняются. Что касается деталей перехода от микроскопического к макроскопическому описанию электромагнитного отклика сплошных сред, их можно найти в большинстве учебников по электромагнетизму, например [Jackson, 1999].

Таким образом, мы будем исходить из макроскопических уравнений Максвелла в следующей форме:

$$\nabla \cdot \mathbf{D} = \rho_{\text{ext}}, \quad (1.1a)$$

$$\nabla \cdot \mathbf{B} = 0, \quad (1.1b)$$

$$\nabla \times \mathbf{E} = -\frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t}, \quad (1.1c)$$

$$\nabla \times \mathbf{H} = \mathbf{J}_{\text{ext}} + \frac{\partial \mathbf{D}}{\partial t}. \quad (1.1d)$$

Эти уравнения связывают четыре макроскопических поля \mathbf{D} (электрическая индукция), \mathbf{E} (электрическое поле), \mathbf{H} (магнитное поле) и \mathbf{B} (магнитная индукция) с распределением плотности внешних зарядов ρ_{ext} и плотности внешних токов \mathbf{J}_{ext} . Отметим, мы не следуем обычной процедуре представления макроскопических уравнений путем деления полных плотностей зарядов ρ_{tot} и токов \mathbf{J}_{tot} на свободные и связанные, что является произвольным делением [Illinskii, Keldysh, 1994] и (особенно в случае с границами раздела между металлами) может привести к недоразумениям в применении граничного условия для электрической индукции. Напротив, мы проводим различие между плотностями внешних ($\rho_{\text{ext}}, \mathbf{J}_{\text{ext}}$) и внутренних (ρ, \mathbf{J}) зарядов и токов, так что в общем $\rho_{\text{tot}} = \rho_{\text{ext}} + \rho$ и $\mathbf{J}_{\text{tot}} = \mathbf{J}_{\text{ext}} + \mathbf{J}$. Внешняя среда управляет рассматриваемой системой, внутренняя среда системы отвечает на внешнее воздействие [Marder, 2000].

Четыре макроскопических поля связаны между собой через поляризацию \mathbf{P} и намагниченность \mathbf{M} с помощью соотношений

$$\mathbf{D} = \varepsilon_0 \mathbf{E} + \mathbf{P}, \quad (1.2a)$$

$$\mathbf{H} = \frac{1}{\mu_0} \mathbf{B} - \mathbf{M}, \quad (1.2b)$$

где ε_0 и μ_0 — это диэлектрическая¹ и магнитная² проницаемости вакуума соответственно. Поскольку в дальнейшем мы будем рассматривать лишь немагнитные среды, нет необходимости учитывать магнитный отклик, и мы ограничимся эффектами электрической поляризации. Плотность поляризации \mathbf{P} описывает электрический дипольный момент, приходящийся на единицу объема материала, вызванный выстраиванием микроскопических диполей материала вдоль электрического поля. Поляризация связана с плотностью индуцируемого внутреннего заряда соотношением $\nabla \cdot \mathbf{P} = -\rho$. Кроме того, закон сохранения заряда ($\nabla \cdot \mathbf{J} = -\partial\rho/\partial t$) требует, чтобы плотности внутренних зарядов и токов были связаны уравнением

$$\mathbf{J} = \frac{\partial \mathbf{P}}{\partial t}. \quad (1.3)$$

Преимуществом данного подхода является то, что макроскопическое электрическое поле включает в себя все поляризационные эффекты, т.к. в нем содержатся оба поля, как внешнее, так и индуцированное. Это можно

¹ $\varepsilon_0 \approx 8.854 \times 10^{-12}$ F/m.

² $\mu_0 \approx 1.257 \times 10^{-6}$ H/m.

показать, подставляя (1.2а) в уравнение (1.1а), что дает

$$\nabla \cdot \mathbf{E} = \frac{\rho_{\text{tot}}}{\varepsilon_0}. \quad (1.4)$$

Впоследствии мы ограничимся линейными, изотропными и немагнитными средами, для которых имеют место следующие материальные уравнения:

$$\mathbf{D} = \varepsilon_0 \varepsilon \mathbf{E}, \quad (1.5a)$$

$$\mathbf{B} = \mu_0 \mu \mathbf{H}, \quad (1.5b)$$

где ε — диэлектрическая проницаемость, а $\mu = 1$ — магнитная проницаемость немагнитной среды. Линейное соотношение (1.5а) между \mathbf{D} и \mathbf{E} определяется также с помощью восприимчивости χ (принятой в литературе при квантово-механическом рассмотрении оптического отклика [Boyd, 2003]), которая определяет линейное соотношение между \mathbf{P} и \mathbf{E} через равенство

$$\mathbf{P} = \varepsilon_0 \chi \mathbf{E}. \quad (1.6)$$

При подстановке уравнений (1.2а) и (1.6) в (1.5а) получаем $\varepsilon = 1 + \chi$.

Важное материальное линейное соотношение, которое следует упомянуть, это соотношение между плотностью тока \mathbf{J} и электрическим полем \mathbf{E} , определяемое через проводимость σ согласно определению

$$\mathbf{J} = \sigma \mathbf{E}. \quad (1.7)$$

Мы покажем, что между диэлектрической проницаемостью и проводимостью (ε и σ) существует связь, и электромагнитные явления в металлах фактически можно исследовать с помощью каждой из этих величин. В области низких частот во многих теоретических рассмотрениях предпочтение отдается проводимости, тогда как экспериментаторы обычно выражают результаты наблюдений в оптическом диапазоне через диэлектрическую проницаемость. Прежде чем развивать эту тему, следует отметить, что выражения (1.5а) и (1.7) справедливы лишь для линейных сред в отсутствии временной или пространственной дисперсии. Поскольку оптический отклик у металлов, очевидно, зависит от частоты и волнового вектора, необходимо учесть временную и пространственную дисперсию, обобщая линейные соотношения

$$\mathbf{D}(\mathbf{r}, t) = \varepsilon_0 \int dt' d\mathbf{r}' \varepsilon(\mathbf{r} - \mathbf{r}', t - t') \mathbf{E}(\mathbf{r}', t'), \quad (1.8a)$$

$$\mathbf{J}(\mathbf{r}, t) = \int dt' d\mathbf{r}' \sigma(\mathbf{r} - \mathbf{r}', t - t') \mathbf{E}(\mathbf{r}', t'), \quad (1.8b)$$

где интегральные ядра ε и σ определяют временные и пространственные характеристики соответствующих линейных соотношений. Отметим, мы неявно предположили, что все масштабы длин значительно больше постоянной решетки материала. Это гарантирует пространственную и временную однородность рассматриваемых функций, в результате они не зависят от абсолютных пространственных и временных координат, а только от их разностей. В локальном случае в функциональной форме связи полей имеет место δ -функции, приводящие к соотношениям (1.5a) и (1.7).

Уравнения (1.8) значительно упрощаются при применении преобразования Фурье, которое превращает интегральные свертки в произведения. Таким образом, мы можем разложить поля по плоским волнам с волновым вектором \mathbf{K} и частотой ω . Это приводит к материальным соотношениям в Фурье-представлении:

$$\mathbf{D}(\mathbf{K}, \omega) = \varepsilon_0 \varepsilon(\mathbf{K}, \omega) \mathbf{E}(\mathbf{K}, \omega), \quad (1.9a)$$

$$\mathbf{J}(\mathbf{K}, \omega) = \sigma(\mathbf{K}, \omega) \mathbf{E}(\mathbf{K}, \omega). \quad (1.9b)$$

Используя уравнения (1.2a), (1.3) и (1.9) и замечая, что при Фурье-преобразовании нужно сделать замену $\partial/\partial t \rightarrow -i\omega$, мы, наконец, приходим к фундаментальному соотношению между диэлектрической проницаемостью (называемой в дальнейшем *диэлектрической функцией*) и проводимостью

$$\varepsilon(\mathbf{K}, \omega) = 1 + \frac{i\sigma(\mathbf{K}, \omega)}{\varepsilon_0\omega}. \quad (1.10)$$

При взаимодействии света с металлами общий вид диэлектрического отклика $\varepsilon(\omega, \mathbf{K})$ можно упростить до предела *пространственно локального* отклика, полагая $\varepsilon(\mathbf{K} = 0, \omega) = \varepsilon(\omega)$. Это упрощение справедливо до тех пор, пока длина волны λ в материале значительно больше всех характерных размеров, таких как размер элементарной ячейки или средняя длина свободного пробега электрона. В общем данное равенство выполняется также при ультрафиолетовых частотах³.

Уравнение (1.10) отражает произвол в разделении зарядов на связанные и свободные. В низкочастотном диапазоне ε обычно используется для

³Однако эффекты пространственной дисперсии могут привести к малым поправкам для поверхностных плазмон-поляритонов в металлических наноструктурах, значительно меньших средней длины свободного пробега электронов, что может возникнуть, например, на острие металлического конуса (см. главу 7).

описания реакции связанных зарядов на управляющее поле, что является причиной электрической поляризации, тогда как проводимость σ связывает со свободными зарядами, являющимися носителями электрического тока. Однако в оптическом диапазоне различие между связанными и свободными зарядами стирается. Например, для сильнолегированных полупроводников, отклик связанных валентных электронов можно было бы описать статической диэлектрической постоянной $\delta\epsilon$, а отклик электронов проводимости — постоянной σ' , что приводит к диэлектрической функции $\epsilon(\omega) = \delta\epsilon + \frac{i\sigma'(\omega)}{\epsilon_0\omega}$. Простое переобозначение $\delta\epsilon \rightarrow 1$ и $\sigma' \rightarrow \sigma' + \frac{\epsilon_0\omega}{i}\delta\epsilon$ приводит к формуле (1.10) [Ashcroft, Mermin, 1976].

В общем случае $\epsilon(\omega) = \epsilon_1(\omega) + i\epsilon_2(\omega)$ и $\sigma(\omega) = \sigma_1(\omega) + i\sigma_2(\omega)$ — комплекснозначные функции частоты ω , связанные уравнением (1.10). В оптическом диапазоне ϵ можно определить экспериментально, исследуя отражательную способность и измеряя комплексный показатель преломления среды $\tilde{n}(\omega) = n(\omega) + ik(\omega)$, связанный с диэлектрической проницаемостью соотношением $\tilde{n} = \sqrt{\epsilon}$. Очевидно, это ведет к

$$\epsilon_1 = n^2 - k^2, \quad (1.11a)$$

$$\epsilon_2 = 2nk, \quad (1.11b)$$

$$n^2 = \frac{\epsilon_1}{2} + \frac{1}{2}\sqrt{\epsilon_1^2 + \epsilon_2^2}, \quad (1.11c)$$

$$k = \frac{\epsilon_2}{2n}, \quad (1.11d)$$

где k называется коэффициентом экстинкции, он определяет оптическое поглощение распространяющихся внутри среды электромагнитных волн. Он связан с коэффициентом поглощения α закона Бера (описывающего экспоненциальное затухание интенсивности распространяющегося внутри среды электромагнитного поля $I(x) = I_0e^{-\alpha x}$) следующим соотношением:

$$\alpha(\omega) = \frac{2k(\omega)\omega}{c}. \quad (1.12)$$

Следовательно, мнимая часть диэлектрической проницаемости ϵ_2 определяет степень поглощения внутри среды. При $|\epsilon_1| \gg |\epsilon_2|$ действительная часть коэффициента преломления n , определяющая снижение фазовой скорости распространяющихся волн вследствие поляризации материала, главным образом определяется величиной ϵ_1 . Таким образом, анализ

уравнения (1.10) показывает, что действительная часть σ определяет степень поглощения, тогда как мнимая часть σ вносит вклад в ε_1 и, следовательно, в уровень поляризации.

Мы завершаем этот раздел изучением решений уравнений Максвелла в виде бегущей волны при отсутствии внешних источников. Комбинация уравнений (1.1c), (1.1d) приводит к волновому уравнению в координатном и Фурье-представлении соответственно:

$$\nabla \times \nabla \times \mathbf{E} = -\mu_0 \frac{\partial^2 \mathbf{D}}{\partial t^2}, \quad (1.13a)$$

$$\mathbf{K}(\mathbf{K} \cdot \mathbf{E}) - K^2 \mathbf{E} = -\varepsilon(\mathbf{K}, \omega) \frac{\omega^2}{c^2} \mathbf{E}, \quad (1.13b)$$

$c = \frac{1}{\sqrt{\varepsilon_0 \mu_0}}$ — скорость света в вакууме. В зависимости от поляризации электрического поля различают два случая. Для поперечных волн, $\mathbf{K} \cdot \mathbf{E} = 0$, что приводит к дисперсионному соотношению

$$K^2 = \varepsilon(\mathbf{K}, \omega) \frac{\omega^2}{c^2}. \quad (1.14)$$

Для продольных волн уравнение (1.13b) принимает вид

$$\varepsilon(\mathbf{K}, \omega) = 0, \quad (1.15)$$

из которого следует, что продольные коллективные колебания возникают на частотах, соответствующих обращению в ноль функции $\varepsilon(\omega)$. Мы вернемся к этому вопросу при обсуждении объемных плазмонов в разделе 1.3.

1.2. Диэлектрическая проницаемость газа свободных электронов

В оптическом диапазоне частот свойства металлов можно понять на основе *плазменной модели*, в которой предполагается что электроны металла представляют собой газ свободных электронов с плотностью n , движущийся относительно неподвижного фона положительных ионных остовов. Для щелочных металлов этот частотный диапазон простирается вплоть до ультрафиолета, в благородных металлах межзонные электронные переходы возникают в оптической области, что ограничивает применимость

данного подхода. Детали решеточного потенциала и электрон-электронных взаимодействий в плазменной модели не учитываются. Предполагается, что особенности зонной структуры могут быть включены в эффективную массу m электронов. При движении электронов в осциллирующем переменном электромагнитном поле на них действуют диссипативные силы вследствие электронных соударений, с характерной частотой $\gamma = 1/\tau$. Величина τ , известная как время релаксации электронов, обычно имеет порядок 10^{-14} сек при комнатной температуре, что соответствует $\gamma = 100$ ТГц.

Запишем уравнение движения для одного электрона из плазменного слоя, находящегося во внешнем электрическом поле \mathbf{E} :

$$m\ddot{\mathbf{x}} + m\gamma\dot{\mathbf{x}} = -e\mathbf{E}. \quad (1.16)$$

Если предположить гармоническую временную зависимость поля $\mathbf{E}(t) = \mathbf{E}_0 e^{-i\omega t}$, то решением данного уравнения, описывающего колебание электрона, будет $\mathbf{x}(t) = \mathbf{x}_0 e^{-i\omega t}$. Комплексная амплитуда \mathbf{x}_0 включает фазовый сдвиг между полем и смещением электрона согласно формуле

$$\mathbf{x}(t) = \frac{e}{m(\omega^2 + i\gamma\omega)} \mathbf{E}(t). \quad (1.17)$$

Смещение электронов вызывает макроскопическую поляризацию $\mathbf{P} = -ne\mathbf{x}$, которая определяется из уравнения

$$\mathbf{P} = -\frac{ne^2}{m(\omega^2 + i\gamma\omega)} \mathbf{E}. \quad (1.18)$$

Подстановка данной формулы для \mathbf{P} в уравнение (1.2а) дает

$$\mathbf{D} = \varepsilon_0 \left(1 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2 + i\gamma\omega} \right) \mathbf{E}, \quad (1.19)$$

где $\omega_p^2 = \frac{ne^2}{\varepsilon_0 m}$ — плазменная частота газа свободных электронов. В результате мы получим диэлектрическую проницаемость газа свободных электронов:

$$\varepsilon(\omega) = 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2 + i\gamma\omega}. \quad (1.20)$$

Действительная и мнимая части этой комплексной диэлектрической функции $\varepsilon(\omega) = \varepsilon_1(\omega) + i\varepsilon_2(\omega)$ определяются соотношениями

$$\varepsilon_1(\omega) = 1 - \frac{\omega_p^2 \tau^2}{1 + \omega^2 \tau^2}, \quad (1.21a)$$

$$\varepsilon_2(\omega) = \frac{\omega_p^2 \tau}{\omega(1 + \omega^2 \tau^2)}, \quad (1.21b)$$

где мы уже использовали обозначение $\gamma = \frac{1}{\tau}$. Интересно исследовать уравнение (1.20) в различных частотных диапазонах в сравнении с частотой соударений γ . Здесь мы ограничимся частотами $\omega < \omega_p$, при которых металлы сохраняют свои металлические свойства. Для близких к ω_p частот произведение $\omega\tau \gg 1$, что приводит к малому поглощению. В этом частотном диапазоне $\varepsilon(\omega)$ — вещественная и

$$\varepsilon(\omega) = 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2}, \quad (1.22)$$

может быть принята в качестве диэлектрической проницаемости газа свободных электронов. Отметим, что поведение благородных металлов в данном частотном диапазоне полностью меняется из-за межзонных переходов, что приводит к увеличению ε_2 . Примеры с золотом и серебром мы обсудим ниже в разделе 1.4.

Далее рассмотрим режим низких частот, в котором $\omega \ll \tau^{-1}$. Отсюда $\varepsilon_2 \gg \varepsilon_1$, а действительная и мнимая части комплексного коэффициента преломления сравнимы по величине:

$$n \approx k = \sqrt{\frac{\varepsilon_2}{2}} = \sqrt{\frac{\tau \omega_p^2}{2\omega}}. \quad (1.23)$$

В этом диапазоне металлы — поглощающие, с коэффициентом поглощения

$$\alpha = \left(\frac{2\omega_p^2 \tau \omega}{c^2} \right)^{\frac{1}{2}}. \quad (1.24)$$

Через статическую проводимость σ_0 это выражение можно преобразовать, используя формулу $\sigma_0 = \frac{ne^2\tau}{m} = \omega_p^2 \tau \varepsilon_0$:

$$\alpha = \sqrt{2\sigma_0 \omega \mu_0}. \quad (1.25)$$

Применение закона поглощения Бера подразумевает, что при низких частотах поля внутри металлов ослабевают как $e^{-z/\delta}$, где δ — толщина скин-слоя,

$$\delta = \frac{2}{\alpha} = \frac{c}{k\omega} = \sqrt{\frac{2}{\sigma_0\omega\mu_0}}. \quad (1.26)$$

Более строгое, основанное на кинетическом уравнении Больцмана [Marder, 2000] обсуждение низкочастотного поведения показывает, что данное описание действительно обоснованно до тех пор, пока длина свободного пробега электронов $l = v_F\tau \ll \delta$, где v_F — ферми-скорость. При комнатной температуре для типичных металлов $l \approx 10$ нм, а $\delta \approx 100$ нм, что подтверждает модель газа свободных электронов. Однако при низких температурах средняя длина свободного пробега может возрасти в несколько раз, что приводит к изменениям в глубине проникновения. Это явление приводит к аномальному скин-эффекту.

Если для описания диэлектрического отклика металлов мы вместо ϵ используем σ , то понятно, что в режиме поглощения эта величина преимущественно действительная, а скорость свободных зарядов изменяется в фазе с управляющим полем, что можно увидеть из уравнения (1.17). Следовательно, в рассматриваемом режиме эффекты релаксации свободных зарядов удобно определять через действительную статическую проводимость σ_0 , тогда как отклик связанных зарядов содержится в диэлектрической проницаемости ϵ_B , как это обсуждалось выше при изучении связи между ϵ и σ .

При более высоких частотах ($1 \leq \omega\tau \leq \omega_p\tau$) комплексный показатель преломления преимущественно мнимый (что приводит к коэффициенту отражения $R \approx 1$ [Jackson, 1999]), а σ приобретает комплексный характер, размывая границу между связанными и свободными зарядами. На языке оптического отклика, $\sigma(\omega)$ входит в выражения лишь в комбинации (1.10) [Ashcroft, Mermin, 1976] вследствие произвольности разделения между свободными и связанными зарядами, которые обсуждались выше.

Тогда как до настоящего момента наше описание подразумевало идеальный металл со свободными электронами, сейчас мы сравним данную модель с важным в области плазмоники примером реального металла (более развернутое обсуждение вы найдете в разделе 1.4). В модели свободного электрона $\epsilon \rightarrow 1$ при $\omega \gg \omega_p$. Для благородных металлов (например золота, серебра, меди) усложнение этой модели необходимо в области $\omega > \omega_p$ (где отклик обусловлен свободными s-электронами), так как близкая к поверхности Ферми заполненная d-зона вызывает высокую степень поляризации окружающей среды. Эту остаточную поляризацию, обусловленную положительным фоном ионных остовов, можно описать путем до-

бавления в уравнение (1.2a) слагаемого $\mathbf{P}_\infty = \varepsilon_0(\varepsilon_\infty - 1)\mathbf{E}$, \mathbf{P} представляет поляризацию (1.18), обусловленную свободными электронами. Этот эффект, следовательно, описывается диэлектрической постоянной ε_∞ (обычно $1 \leq \varepsilon_\infty \leq 10$), и мы можем записать

$$\varepsilon(\omega) = \varepsilon_\infty - \frac{\omega_p^2}{\omega^2 + i\gamma\omega}. \quad (1.27)$$

Пределы применимости приближения свободных электронов (1.27) для золота можно проанализировать из рис. 1.1. Здесь показаны действительная и мнимая части ε_1 и ε_2 для диэлектрической проницаемости, подогнанные к экспериментально определенной диэлектрической функции золота [Johnson, Christy, 1972]. Очевидно, из-за возникновения межзонных переходов, приводящих к росту ε_2 в оптическом диапазоне, применение модели свободных электронов в этом диапазоне становится невозможным. Более детально это будет обсуждаться в разделе 1.4. Компоненты комплексного показателя преломления, соответствующие точкам на рис. 1.1, показаны на рис. 1.2.

Поучительно связать диэлектрическую проницаемость газа свободных электронов (1.20) в классической модели Друде [Drude, 1900] с проводимостью металлов в переменном поле $\sigma(\omega)$. Это легко увидеть, если заметить, что уравнение (1.16) можно переписать следующим образом:

$$\dot{\mathbf{p}} = -\frac{\mathbf{p}}{\tau} - e\mathbf{E}, \quad (1.28)$$

где $\mathbf{p} = m\dot{\mathbf{x}}$ — импульс электрона. С помощью рассуждений, аналогичных приведенным выше, мы приходим к следующему выражению для проводимости в переменном поле $\sigma = \frac{nep}{m}$:

$$\sigma(\omega) = \frac{\sigma_0}{1 - i\omega\tau}. \quad (1.29)$$

Сравнивая уравнения (1.20) и (1.29), мы получаем

$$\varepsilon(\omega) = 1 + \frac{i\sigma(\omega)}{\varepsilon_0\omega}, \quad (1.30)$$

воспроизводя предыдущий результат (1.10). Таким образом, диэлектрическая проницаемость газа свободных электронов (1.20) также известна как модель Друде для оптического отклика металлов.

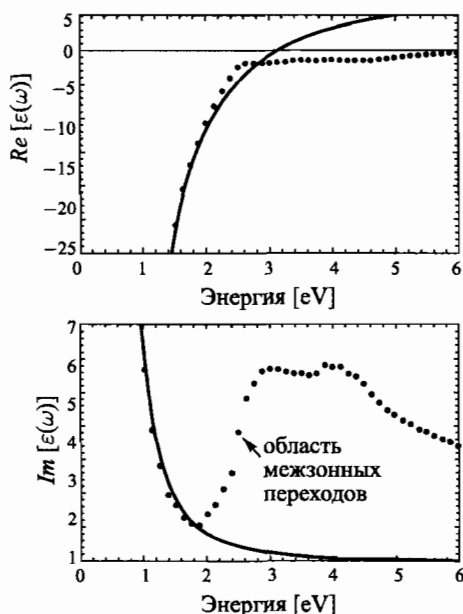


Рис. 1.1. Диэлектрическая проницаемость $\epsilon(\omega)$ (1.27) газа свободных электронов (сплошная линия), согласованная с экспериментальными данными для золота [Johnson, Christy, 1972] (точки). Межзонные переходы ограничивают применимость данной модели в видимой области и более высоких частотах

1.3. Дисперсионные соотношения для объемных плазмонов в приближении газа свободных электронов

Теперь обратимся к рассмотрению режима прозрачности $\omega > \omega_p$ в модели газа свободных электронов. Подставляя формулу для диэлектрической проницаемости (1.22) в (1.14), получим дисперсионное уравнение для плазменных волн:

$$\omega^2 = \omega_p^2 + K^2 c^2. \quad (1.31)$$

Это дисперсионное уравнение представлено на рис. 1.3. Как следует из рисунка, для $\omega < \omega_p$ распространение электромагнитных волн в металле невозможно, в случае $\omega > \omega_p$ в металле существуют поперечные электромагнитные волны с групповой скоростью $v_g = d\omega/dK < c$.

Значение плазменной частоты ω_p можно понять из условия обращения в ноль диэлектрической проницаемости в пределе слабого затухания волны

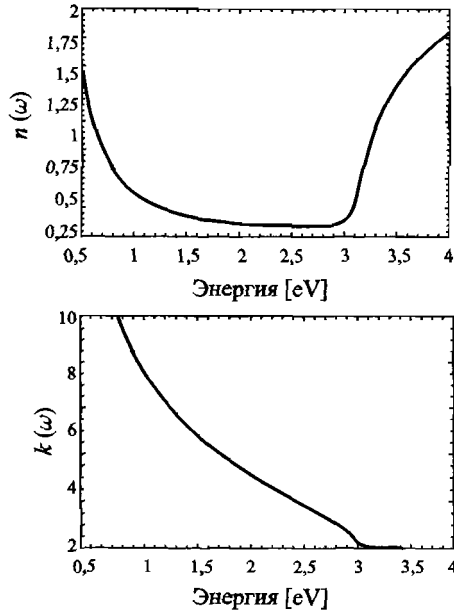


Рис. 1.2. Комплексный показатель преломления для волн в модели свободных электронов, см. также рис. 1.1

$\varepsilon(\omega_p) = 0$ (для $\mathbf{K} = 0$). Следовательно, рассматриваемое возбуждение соответствует коллективной продольной моде, как следует из формулы (1.15). Для волны $\mathbf{D} = 0 = \varepsilon_0 \mathbf{E} + \mathbf{P}$. Отсюда следует, что в диапазоне плазменных частот электрическое поле связано с поляризацией соотношением $\mathbf{E} = \frac{-\mathbf{P}}{\varepsilon_0}$.

С точки зрения физики плазменная частота ω_p может быть понята из рассмотрения коллективных продольных колебаний газа электронов проводимости относительно неподвижного положительного фона ионных остовов. Как условно показано на рис. 1.4, коллективное смещение электронного газа на расстояние u ведет к появлению поверхностной плотности заряда $\sigma \pm neiu$ на границах слоя. Таким образом, на смещенный электронный газ действует возвращающая сила, в результате классическое движение электронов может быть проанализировано из уравнений движения $n m \ddot{u} = -neE$. Подставляя в уравнение формулу для электрического поля, приходим к дифференциальному уравнению

$$n m \ddot{u} = -\frac{n^2 e^2 u}{\varepsilon_0}, \quad (1.32a)$$

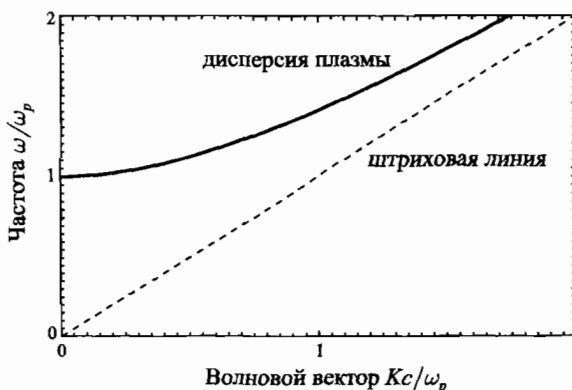


Рис. 1.3. Дисперсионное уравнение плазменной волны в модели газа свободных электронов. Распространение волны возможно лишь при выполнении условия $\omega > \omega_p$

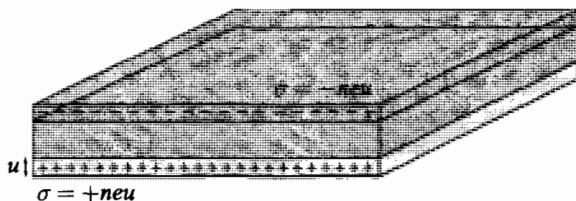


Рис. 1.4. Смещение электронов в длинноволновом объемном плазмоне

$$\ddot{u} + \omega_p^2 u = 0. \quad (1.32b)$$

Как следует из уравнения, плазменная частота ω_p является собственной частотой колебаний электронного слоя как целого относительно ионного остова. Отметим, мы подразумевали, что фаза колебаний всех электронов одинакова, таким образом, ω_p соответствует частоте колебаний в длинноволновом пределе, где $K = 0$. Эти колебания называются плазмонами (или *объемными* плазмонами, рассматриваемые объемные плазмоны отличаются от *поверхностных* и *локализованных* плазмонов, которые будут обсуждаться в книге). Продольная поляризация объемных плазмонов не позволяет реализовать их возбуждение на поверхности проводника с помощью поперечной электромагнитной волны, возбуждение объемных плазмонов возможно с помощью направленного пучка частиц. Следствием продольного характе-

ра плазмонов является затухание, возникающее из-за передачи энергии от плазмона к электронам, известное как затухание Ландау.

Плазменная частота металлов может быть определена из экспериментов по рассеянию электронного пучка на тонкой металлической фольге. Для большинства металлов плазменная частота находится в ультрафиолетовом диапазоне: ω_p в энергетической шкале находится в диапазоне 1–15 эВ, в зависимости от особенностей строения электронных спектров [Kittel, 1996]. В качестве дополнения отметим — рассмотренные продольные колебания электромагнитного поля существуют также в неполярных диэлектриках, в которых валентные электроны могут совершать коллективные колебания относительно атомного ионного остова.

Кроме рассмотренных колебаний для частоты ω_p , продольные колебания электромагнитного поля существуют и при более высоких частотах с конечным волновым вектором, для которых выполняется уравнение (1.15). Вывод дисперсионного уравнения для объемных плазмонов можно найти во многих учебниках по физике твердого тела, например [Marder, 2000; Kittel, 1996]. В квадратичном приближении по K

$$\omega^2 = \omega_p^2 + \frac{6E_F K^2}{5m}, \quad (1.33)$$

где E_F — ферми-энергия электронов. В эксперименте дисперсионное соотношение может быть восстановлено по неупругому рассеянию, например через спектроскопические потери энергии электрона (СПЭЭ).

1.4. Межзонные переходы в металлах

Выше было показано, что диэлектрическая проницаемость (1.20) модели Друде удовлетворительно описывает оптический отклик металлов лишь для энергий квантов ниже энергетического порога переходов между зонами. Для благородных металлов межзонные переходы начинают появляться при энергиях, превышающих 1 эВ (соответственно при длине волны $\lambda \approx 1 \mu\text{m}$). В качестве примеров на рис. 1.1 и 1.5 показаны действительная и мнимая части $\varepsilon_1(\omega)$, $\varepsilon_2(\omega)$ диэлектрической проницаемости золота и серебра [Johnson and Christy, 1972] и данные, следующие из модели Друде, которые могут быть использованы для интерпретации. Очевидно, при высоких частотах модель Друде не подходит для описания ни ε_1 , ни ε_2 , а в случае с золотом ее справедливость теряется уже на границе между ближней инфракрасной и видимой частями спектра. Ограничимся сравнением модели Друде и диэлектрической проницаемости реальных металлов

на примере золота и серебра — наиболее важных металлов, используемых в плазмонике, — в видимом и ближнем инфракрасном диапазоне. Фотоны, ответственные за межзонные переходы, переводят электроны из заполненных зон ниже ферми-уровня в более высокие по энергии зоны. Теоретически, это можно описать с помощью аналогичного подхода, который используется для оценки прямых межзонных переходов в полупроводниках [Ashcroft and Mermin, 1976; Marder, 2000], мы не будем останавливаться на детальном обсуждении. Основным следствием обсуждаемых процессов, связанных с поверхностными плазмон-поляритонами, является затухание и конкуренция между двумя возбуждениями в видимом диапазоне.

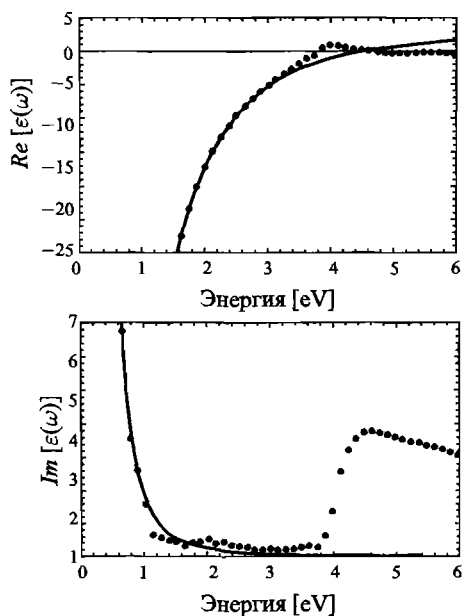


Рис. 1.5. Реальная и мнимая части $\epsilon(\omega)$ для серебра, полученные Джонсоном и Кристи [Johnson и Christy, 1972] (точки), и данные по модели Друде

Для практических целей преимуществом модели Друде является ее простота, она использовалась в численных методах для конечно-разностных схем интегрирования уравнений Максвелла [Kashiwa and Fukai, 1990] путем прямого вычисления индуцированных токов с помощью уравнений (1.16). Усложнение модели позволяет феноменологически описать

оптические свойства золота и серебра в видимом диапазоне, заменив уравнение (1.16) на

$$m\ddot{x} + m\gamma\dot{x} + m\omega_0^2x = -eE. \quad (1.34)$$

Таким образом, межзонные переходы могут быть феноменологически учтены с помощью классической модели связанного электрона с резонансной частотой ω_0 , а уравнение (1.34) может быть затем использовано для вычисления результирующей поляризации. Отметим, уравнения в данном виде могут быть использованы для моделирования функции $\varepsilon(\omega)$ благородных металлов с учетом отдельных парциальных вкладов. Каждое из парциальных слагаемых имеет вид Лоренц-осциллятора $\frac{A_i}{\omega_i^2 - \omega^2 - i\gamma_i\omega}$, которые нужно дополнительно учесть, наряду с вкладом свободных электронов (1.20) [Vial et al., 2005].

1.5. Плотность энергии электромагнитного поля в металлах

В завершение данной главы рассмотрим энергию электромагнитного поля в металле или, в более общем смысле, дисперсной среде. Так как величина локализации поля часто измеряется в единицах распределения электромагнитной энергии, необходимо рассмотреть дисперсионные эффекты. Для линейной среды без учета потерь на рассеяние (например, как следует из уравнения (1.5)) плотность энергии электромагнитного поля можно записать в виде [Jackson, 1999]

$$u = \frac{1}{2}(\mathbf{E} \cdot \mathbf{D} + \mathbf{B} \cdot \mathbf{H}). \quad (1.35)$$

Данное выражение вместе с вектором потока электромагнитной энергии (вектором Пойнтинга) $\mathbf{S} = \mathbf{E} \times \mathbf{H}$ входит в закон сохранения

$$\frac{\partial u}{\partial t} + \nabla \cdot \mathbf{S} = -\mathbf{J} \cdot \mathbf{E}, \quad (1.36)$$

связывающий изменение плотности электромагнитной энергии с потоком энергии и поглощением энергии в проводнике.

Впоследствии мы сконцентрируемся на вкладе u_E электрического поля \mathbf{E} в общую плотность электромагнитной энергии. Из-за дисперсии величина ε в металлах комплексная и зависит от частоты, в результате уравнение (1.35) неприменимо. Для состоящего из монохроматических компонентов поля в курсе «Теоретическая физика» Ландау и Лифшиц показали,

что закон сохранения (1.36) может быть выполнен, если и заменить на эффективную плотность электрической энергии u_{eff} , определяемую как

$$u_{\text{eff}} = \frac{1}{2} \text{Re} \left[\frac{d(\omega \varepsilon)}{d\omega} \right]_{\omega_0} \langle \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) \cdot \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) \rangle, \quad (1.37)$$

где $\langle \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) \cdot \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) \rangle$ соответствует усреднению поля по времени, а ω_0 — несущая частота. Данное выражение справедливо, если \mathbf{E} содержит гармоники в узком частотном интервале около ω_0 и поля медленно изменяются на временном интервале $1/\omega_0$. Более того, считается, что $|\varepsilon_2| \ll |\varepsilon_1|$, так что поглощение мало. Отметим, точное вычисление поглощения в правой части уравнения (1.36) требует особого подхода, $\mathbf{J} \cdot \mathbf{E}$ следует заменить на $\omega_0 \text{Im}[\varepsilon(\omega_0)] \langle \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) \cdot \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) \rangle$, если диэлектрическая проницаемость металла определяется через $\varepsilon(\omega)$ [Jackson, 1999], аналогично соотношениям (1.10).

Требование малого поглощения ограничивает применимость уравнения (1.37) в видимой и ближней инфракрасной части спектра, но не для низких частот и режимов межзонных переходов, где $|\varepsilon_2| > |\varepsilon_1|$. Энергию поля можно также преопределить, приняв во внимание электрическую поляризацию в уравнении (1.16) в форме, предложенной в работах [Loudon, 1970; Ruppel, 2002]. Полученное для энергии электрического поля, определяемого диэлектрической проницаемостью газа свободных электронов, в материале имеет вид $\varepsilon = \varepsilon_1 + i\varepsilon_2$ в форме (1.20):

$$u_{\text{eff}} = \frac{\varepsilon_0}{4} \left(\varepsilon_1 + \frac{2\omega\varepsilon_2}{\gamma} \right) |\mathbf{E}|^2, \quad (1.38)$$

где дополнительный множитель $1/2$ соответствует предположению гармонической временной зависимости полей. Для малых значений ε_2 вторым слагаемым в (1.38) можно пренебречь, в результате приходим к формуле (1.37) для гармоничных во времени полей. Во второй главе будет использоваться формула (1.38) для анализа локализации энергии полей на металлических поверхностях.

ГЛАВА 2

Поверхностные плазмон-поляритоны на границе раздела металл–диэлектрик

Поверхностные плазмон-поляритоны представляют собой электромагнитные возбуждения, распространяющиеся в достаточно тонком слое по границе раздела между проводником и диэлектриком. Они возникают как результат взаимодействия электромагнитных полей диэлектрика с электронной плазмой проводника. В данной главе, исходя из волнового уравнения, будут рассмотрены основные свойства поверхностных плазмон-поляритонов, распространяющихся как в окрестности одиночных плоских границ раздела, так и в многослойных структурах, состоящих из слоев металла и диэлектрика. Поверхностные волны характеризуются дисперсионным соотношением и пространственным профилем распределения электромагнитных полей, в главе также подробно будут обсуждены условия локализации поля. Практическое использование поверхностных плазмон-поляритонов в волноводах будет рассмотрено в главе 7.

2.1. Волновое уравнение

Для исследования свойств поверхностных плазмон-поляритонов (ППП) рассмотрим уравнения Максвелла (1.1) в случае плоской границы раздела между проводником и диэлектриком. Удобно преобразовать уравнения Максвелла к виду *волновых уравнений*. Как было показано в главе 1, в отсутствие внешних зарядов и токов из уравнений (1.1a), (1.1d) можно получить

$$\nabla \times \nabla \times \mathbf{E} = -\mu_0 \frac{\partial^2 \mathbf{D}}{\partial t^2}. \quad (2.1)$$

Используя тождества $\nabla \times \nabla \times \mathbf{E} \equiv \nabla(\nabla \cdot \mathbf{E}) - \nabla^2 \mathbf{E}$, а также $\nabla \cdot (\varepsilon \mathbf{E}) \equiv \mathbf{E} \cdot \nabla \varepsilon + \varepsilon \nabla \cdot \mathbf{E}$ и вспоминая, что в отсутствие внешних источников $\nabla \cdot \mathbf{D} = 0$,

уравнение (2.1) можно переписать в виде

$$\nabla \left(-\frac{1}{\varepsilon} \mathbf{E} \cdot \nabla \varepsilon \right) - \nabla^2 \mathbf{E} = -\mu_0 \varepsilon_0 \varepsilon \frac{\partial^2 \mathbf{E}}{\partial t^2}. \quad (2.2)$$

В случае малых изменений диэлектрических свойств среды $\varepsilon = \varepsilon(\mathbf{r})$ на масштабах порядка длины волны, уравнение (2.2) сводится к волновому уравнению

$$\nabla^2 \mathbf{E} - \frac{\varepsilon}{c^2} \frac{\partial^2 \mathbf{E}}{\partial t^2} = 0. \quad (2.3)$$

Для неоднородной среды это уравнение следует решать отдельно в областях постоянных значений ε , а полученные решения сшить, используя соответствующие граничные условия. Чтобы привести уравнение (2.3) к удобному виду для описания локализованных волн, сделаем следующие пояснения. Во-первых, временную зависимость электрического поля будем считать гармонической: $\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = \mathbf{E}(\mathbf{r})e^{-i\omega t}$. Подстановка этой формулы в уравнение (2.3) дает известное уравнение Гельмгольца

$$\nabla^2 \mathbf{E} + k_0^2 \varepsilon \mathbf{E} = 0, \quad (2.4)$$

где $k_0 = \frac{\omega}{c}$ — волновой вектор распространяющейся в вакууме волны.

Следующим шагом необходимо конкретизировать геометрию задачи. Для простоты мы ограничимся одномерным случаем, в котором ε зависит только от одной пространственной координаты, например $\varepsilon = \varepsilon(z)$. Будем рассматривать волну, распространяющуюся вдоль оси x декартовой системы координат, в направлении оси y (см. рис. 2.1), среду будем считать однородной. В нашем случае для поверхностной электромагнитной волны плоскость $z = 0$ совпадает с границей раздела, электрическое поле волны можно записать в виде $\mathbf{E}(x, y, z) = \mathbf{E}(z)e^{i\beta x}$. Комплексный параметр $\beta = k_x$ называется коэффициентом распространения бегущей волны, соответствует волновому вектору в направлении распространения. Подстановка данного выражения в уравнение (2.4) приводит к искомой форме волнового уравнения:

$$\frac{\partial^2 \mathbf{E}(z)}{\partial z^2} + (k_0^2 \varepsilon - \beta^2) \mathbf{E} = 0. \quad (2.5)$$

Естественно, аналогичное уравнение справедливо и для магнитного поля \mathbf{H} .

Уравнение (2.5) служит исходным пунктом для общего анализа электромагнитных мод, распространяющихся в волноводах. Более подробное

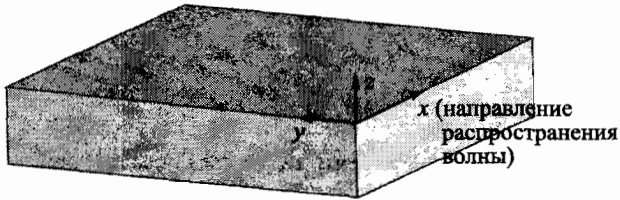


Рис. 2.1. Геометрия планарного волновода. Волна распространяется вдоль оси x декартовой системы координат

обсуждение свойств уравнения и его применений можно найти в книге [Yariv, 1997], где также содержатся и другие исследования по фотонике и оптоэлектронике. Для того чтобы из волнового уравнения найти пространственный профиль и закон дисперсии волн, необходимо найти явные выражения для различных компонент полей \mathbf{E} и \mathbf{H} . Это легко получить из уравнений (1.1c), (1.1d).

В случае гармонической зависимости от времени $\left(\frac{\partial}{\partial t} = -i\omega\right)$ получим следующую систему связанных уравнений:

$$\frac{\partial E_z}{\partial y} - \frac{\partial E_y}{\partial z} = i\omega\mu_0 H_x, \quad (2.6a)$$

$$\frac{\partial E_x}{\partial z} - \frac{\partial E_z}{\partial x} = i\omega\mu_0 H_y, \quad (2.6b)$$

$$\frac{\partial E_y}{\partial x} - \frac{\partial E_x}{\partial y} = i\omega\mu_0 H_z, \quad (2.6c)$$

$$\frac{\partial H_z}{\partial y} - \frac{\partial H_y}{\partial z} = -i\omega\varepsilon_0\varepsilon E_x, \quad (2.6d)$$

$$\frac{\partial H_x}{\partial z} - \frac{\partial H_z}{\partial x} = -i\omega\varepsilon_0\varepsilon E_y, \quad (2.6e)$$

$$\frac{\partial H_y}{\partial x} - \frac{\partial H_x}{\partial y} = -i\omega\varepsilon_0\varepsilon E_z. \quad (2.6f)$$

Для волны, распространяющейся вдоль оси x $\left(\frac{\partial}{\partial x} = i\beta\right)$ и однородной вдоль y -направления $\left(\frac{\partial}{\partial y} = 0\right)$, система уравнений упрощается следую-

щим образом:

$$\frac{\partial E_z}{\partial z} = -i\omega\mu_0 H_x, \quad (2.7a)$$

$$\frac{\partial E_x}{\partial z} - i\beta E_z = i\omega\mu_0 H_y, \quad (2.7b)$$

$$i\beta E_y = i\omega\mu_0 H_z, \quad (2.7c)$$

$$\frac{\partial H_y}{\partial z} = i\omega\varepsilon_0\varepsilon E_x, \quad (2.7d)$$

$$\frac{\partial H_x}{\partial z} - i\beta H_z = -i\omega\varepsilon_0\varepsilon E_y, \quad (2.7e)$$

$$i\beta H_y = -i\omega\varepsilon_0\varepsilon E_z. \quad (2.7f)$$

Нетрудно показать, рассматриваемая система уравнений имеет два самосогласованных решения, соответствующих волнам с различными поляризациями. Первое решение определяет поперечные магнитные (ТМ- или р-) моды, в которых отличны от нуля лишь компоненты полей E_x , E_z и H_y , второе – поперечные электрические (ТЕ- или s-) моды с отличными от нуля H_x , H_z и E_y .

Для ТМ-мод система уравнений (2.7) сводится к

$$E_x = -i\frac{1}{\omega\varepsilon_0\varepsilon} \frac{\partial H_y}{\partial z}, \quad (2.8a)$$

$$E_z = -\frac{\beta}{\omega\varepsilon_0\varepsilon} H_y, \quad (2.8b)$$

а волновое уравнение в этом случае приобретает вид

$$\frac{\partial^2 H_y}{\partial z^2} + (k_0^2\varepsilon - \beta^2)H_y = 0. \quad (2.8c)$$

Аналогичная система уравнений для ТЕ-мод имеет вид

$$H_x = i\frac{1}{\omega\mu_0} \frac{\partial E_y}{\partial z}, \quad (2.9a)$$

$$H_z = \frac{\beta}{\omega\mu_0} E_y, \quad (2.9b)$$

и соответствующее волновое уравнение:

$$\frac{\partial^2 E_y}{\partial z^2} + (k_0^2 \varepsilon - \beta^2) E_y = 0. \quad (2.9c)$$

Приведенные выше уравнения позволяют анализировать поверхностные плазмон-поляритоны.

2.2. Поверхностные плазмон-поляритоны на одиночных границах раздела

Простейшей структурой, поддерживающей ППП, является плоская граница раздела (рис. 2.2) между непоглощающим диэлектриком, заполняющим полупространством ($z > 0$) с положительной вещественной диэлектрической проницаемостью ε_2 и токопроводящим полупространством ($z < 0$), которое определяется диэлектрической функцией $\varepsilon_1(\omega)$. Требование металлических свойств полупространства подразумевает, что $\text{Re}[\varepsilon_1] < 0$. Как было показано в главе I, в металлах это условие выполняется при частотах ниже частоты объемных плазмонов ω_p . Мы ищем решение в виде бегущих волн, локализованных в окрестности границы раздела, то есть затухающих в направлении, перпендикулярном z -направлению.



Рис. 2.2. Геометрия распространения ППП вдоль одиночной границы раздела между металлом и диэлектриком

Для начала рассмотрим ТМ-решения. Используя первую систему уравнений (2.8), в обоих полупространствах получаем

$$H_y(z) = A_2 e^{i\beta x} e^{-k_2 z}, \quad (2.10a)$$

$$E_x(z) = i A_2 \frac{1}{\omega \varepsilon_0 \varepsilon_2} k_2 e^{i\beta x} e^{-k_2 z}, \quad (2.10b)$$

$$E_z(z) = -A_1 \frac{\beta}{\omega \varepsilon_0 \varepsilon_2} e^{i\beta x} e^{-k_2 z} \quad (2.10c)$$

при $z > 0$ и

$$H_y(z) = A_1 e^{i\beta x} e^{k_1 z}, \quad (2.11a)$$

$$E_x(z) = -iA_1 \frac{1}{\omega \varepsilon_0 \varepsilon_1} k_1 e^{i\beta x} e^{k_1 z}, \quad (2.11b)$$

$$E_z(z) = -A_1 \frac{\beta}{\omega \varepsilon_0 \varepsilon_1} e^{i\beta x} e^{k_1 z} \quad (2.11c)$$

при $z < 0$. Здесь $k_i \equiv k_{z,i}$ ($i = 1, 2$) — проекция мнимого волнового вектора на направление, перпендикулярное границе раздела двух сред. Обратная ей величина $\hat{z} = 1/|k_z|$ определяет длину затухания полей в этом направлении и представляет собой поперечный масштаб локализации волны. Непрерывность H_y и $\varepsilon_i E_z$ на границе раздела двух сред требует равенства $A_1 = A_2$, а также

$$\frac{k_2}{k_1} = -\frac{\varepsilon_2}{\varepsilon_1}. \quad (2.12)$$

Отметим, что при выбранном здесь соглашении относительно знаков показателей экспонент в уравнениях (2.10), (2.11) локализация волны вблизи поверхности требует выполнения неравенства $\text{Re}[\varepsilon_1] < 0$ при $\varepsilon_2 > 0$. Это обозначает, что поверхностные волны могут существовать только на границах раздела материалов с противоположными знаками действительных частей их диэлектрических проницаемостей, то есть только на границах раздела проводников и диэлектриков. Более того, выражение для H_y должно удовлетворять волновому уравнению (2.8с), что дает

$$k_1^2 = \beta^2 - k_0^2 \varepsilon_1, \quad (2.13a)$$

$$k_2^2 = \beta^2 - k_0^2 \varepsilon_2. \quad (2.13b)$$

Комбинируя эти уравнения с (2.12), мы получаем основной результат данного раздела — дисперсионное соотношение для ППП, распространяющихся вдоль границы раздела между двумя полупространствами

$$\beta = k_0 \sqrt{\frac{\varepsilon_1 \varepsilon_2}{\varepsilon_1 + \varepsilon_2}}. \quad (2.14)$$

Данное выражение справедливо как для действительных, так и для комплексных значений ε_1 , то есть как для поглощающих, так и для непоглощающих проводников.

Прежде чем приступить к более детальному обсуждению свойств дисперсионного соотношения (2.14), кратко проанализируем условия суще-

ствования поверхностных ТЕ-мод. Используя уравнение (2.9), получим соответствующие выражения для компонент полей:

$$E_y(z) = A_2 e^{i\beta x} e^{-k_2 z}, \quad (2.15a)$$

$$H_x(z) = -i A_2 \frac{1}{\omega \mu_0} k_2 e^{i\beta x} e^{-k_2 z}, \quad (2.15b)$$

$$H_z(z) = A_2 \frac{\beta}{\omega \mu_0} e^{i\beta x} e^{-k_2 z} \quad (2.15c)$$

при $z > 0$ и

$$E_y(z) = A_1 e^{i\beta x} e^{k_1 z}, \quad (2.16a)$$

$$H_x(z) = i A_1 \frac{1}{\omega \mu_0} k_1 e^{i\beta x} e^{k_1 z}, \quad (2.16b)$$

$$H_z(z) = A_1 \frac{\beta}{\omega \mu_0} e^{i\beta x} e^{k_1 z} \quad (2.16c)$$

при $z < 0$. Непрерывность E_y и H_x на границе раздела приводит к следующему условию:

$$A_1(k_1 + k_2) = 0. \quad (2.17)$$

Так как удержание волны вблизи поверхности возможно при выполнении неравенств $\text{Re}[k_1] > 0$ и $\text{Re}[k_2] > 0$, это условие выполняется только при $A_1 = 0$ и, следовательно, при $A_2 = A_1 = 0$. Таким образом, с ТЕ-поляризацией поверхностных мод не существует. *Поверхностные плазмон-поляритоны существуют только при ТМ-поляризации.*

Рассмотрим более подробно свойства поверхностных плазмон-поляритонов, следующие из дисперсионных соотношений. На рис. 2.3 представлены рассчитанные с помощью (2.14) дисперсионные соотношения ППП для границ раздела металл–воздух ($\varepsilon_2 = 1$) и металл–кварцевое стекло ($\varepsilon_2 = 2,25$). В обоих случаях предполагается, что металл является непоглощающим, и диэлектрическая проницаемость определяется из приближения Друде (1.22). На приведенном графике частота ω нормирована на плазменную частоту ω_p , также на рисунке представлена действительная и мнимая части волнового вектора β — действительная (сплошные линии) и мнимая (штриховые линии). Поскольку ППП имеют характер связанных колебаний, им отвечают участки дисперсионных кривых, расположенные справа от дисперсионных кривых света, распространяющихся в воздухе и кварце соответственно. Таким образом, для возбуждения ППП с помощью электромагнитных волн требуются специальные методы согласования, такие как

решеточный ввод или призматическая связь, что будет обсуждаться в главе 3. Как упоминалось в главе 1, электромагнитные волны в металле возникают в режиме прозрачности $\omega > \omega_p$. Для частот, отвечающих различным модам, находится щель, в которой волновое число β принимает чисто мнимые значения, и, следовательно, распространение волн невозможно.

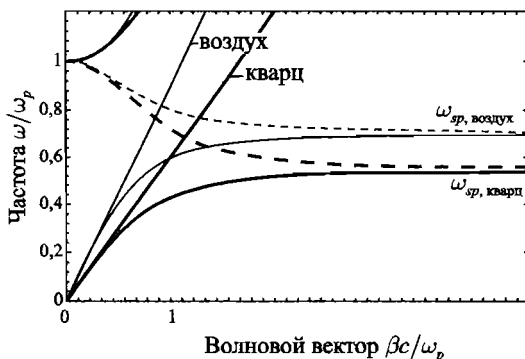


Рис. 2.3. Дисперсионные кривые ППП, распространяющихся вдоль границы раздела между металлом (с пренебрежимо малой частотой электронных соударений) и воздухом (серые линии), и кварцем (черные линии)

При малых волновых числах, соответствующих относительно низким частотам (середина инфракрасного диапазона и ниже) коэффициент распространения ППП близок к значению k_0 , отвечающему оптическому закону дисперсии, и поля проникают вглубь диэлектрика на расстояние, гораздо большее длины волны. Следовательно, в этом режиме поверхностные плазмон-поляритоны приобретают природу скользящего светового поля, известного в литературе как *волны Зоммерфельда–Ценнека* [Goubau, 1950].

В противоположном режиме больших волновых чисел частота ППП приближается к характерной частоте поверхностного плазмона:

$$\omega_{sp} = \frac{\omega_p}{\sqrt{1 + \varepsilon_2}}, \quad (2.18)$$

что можно показать, подставляя диэлектрическую проницаемость газа свободных электронов (1.20) в уравнение (2.14). В пределе пренебрежимо малого затухания для электронов проводимости (что подразумевает $\text{Im}[\varepsilon_1(\omega)] = 0$) волновое число β стремится к бесконечности, а групповая скорость $v_g \rightarrow 0$ в случае частоты, стремящейся к значению ω_{sp} . Таким

образом, мода приобретает электростатический характер и называется *поверхностным плазмоном*. Действительно, ее можно получить путем непосредственного решения уравнения Лапласа $\nabla^2\phi = 0$ для изображенной на рис. 2.2 геометрии с одиночной границей раздела, где ϕ — электрический потенциал. Решение, имеющее волновой характер вдоль оси x и экспоненциально затухающее вдоль оси z , имеет вид

$$\phi(z) = A_2 e^{i\beta x} e^{-k_2 z} \quad (2.19)$$

при $z > 0$ и

$$\phi(z) = A_1 e^{i\beta x} e^{k_1 z} \quad (2.20)$$

при $z < 0$. Уравнение $\nabla^2\phi = 0$ требует выполнения равенства $k_1 = k_2 = \beta$: глубины проникновения $|\hat{z}| = 1/k_z$ в диэлектрике и металле одинаковы. Непрерывность ϕ и $\varepsilon \partial\phi/\partial z$ обеспечивает непрерывность тангенциальных компонент напряженности электрического поля и нормальной компоненты электрической индукции и, следовательно, требует выполнения равенств $A_1 = A_2$ и

$$\varepsilon_1(\omega) + \varepsilon_2 = 0. \quad (2.21)$$

В случае металла, свойства которого определяются диэлектрической функцией (1.22), приведенное условие выполняется при ω_{sp} . Сравнение уравнений (2.21) и (2.14) показывает, что поверхностный плазмон действительно является предельной формой ППП при $\beta \rightarrow \infty$.

Выше при обсуждении рис. 2.3 мы предполагали проводник идеальным, то есть считали, что $\text{Im}[\varepsilon_1] = 0$. Однако в реальных металлах коллективные возбуждения поглощаются как электронами, так и межзонными электронными переходами. Следовательно, $\varepsilon_1(\omega)$ является комплексной величиной. Комплексные значения принимает также и коэффициент распространения ППП β . Бегущие ППП экспоненциально затухают на некоторой длине (также называемой длиной распространения) $L = (2 \text{Im}[\beta])^{-1}$, типичные значения которой в видимой области спектра лежат между 10 и 100 мкм в зависимости от характеристик рассматриваемой структуры металл-диэлектрик.

В качестве примера на рис. 2.4 представлены дисперсионные кривые ППП, распространяющихся вдоль границы раздела серебро-воздух и серебро-кварц, рассчитанные с помощью диэлектрической функции серебра $\varepsilon_1(\omega)$, полученной из результатов Джонсона и Кристи [Johnson and Christy, 1972]. Как следует из рисунка, в противоположность изображенным на рис. 2.3 дисперсионным кривым незатухающих ППП с приближением к частоте поверхностных плазмонов ω_{sp} волновое число связанных ППП стре-

мится к некоторому максимальному, но *конечному* значению. Это ограничение устанавливает нижнюю границу как для длины волны $\lambda_{sp} = 2\pi / \text{Re}\{\beta\}$ поверхностного плазмона, так и для степени локализации моды в перпендикулярном к поверхности направлении, так как поля ППП убывают по закону $e^{-|k_z||z|}$, где $k_z = \sqrt{\beta^2 - \varepsilon_2 \left(\frac{\omega}{c}\right)^2}$. Это приводит и к появлению *квазисвязанных* мод в интервале частот между ω_{sp} и ω_p , который в случае идеального проводника соответствует щели дисперсионного соотношения, где $\text{Re}\{\beta\} = 0$ (рис. 2.3).

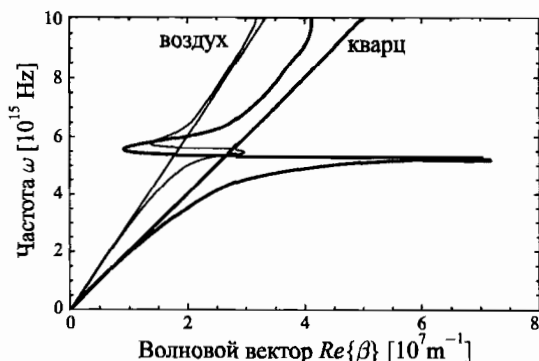


Рис. 2.4. Дисперсионные кривые ППП, распространяющихся вдоль границ раздела серебро–воздух (серая кривая) и серебро–кварц (черная кривая). Вследствие поглощения волновое число связанных ППП приближается к конечному пределу при частоте поверхностного плазмона

Завершим этот раздел обсуждением длины распространения L и удержания энергии (определяемого величиной \hat{z}) в диэлектрике. Как видно из дисперсионного уравнения, эти величины сильно зависят от частоты. При частотах, близких к ω_{sp} , ППП сильно локализованы вблизи границы раздела и имеют малую длину распространения. Используя обсуждавшиеся выше формулы, мы находим, что ППП на границе раздела серебро–воздух при $\lambda_0 = 450$ нм имеют $L \approx 16$ мкм и $\hat{z} \approx 180$ нм, тогда как при $\lambda_0 \approx 1,5$ мкм: $L \approx 1080$ мкм, $\hat{z} \approx 2,6$ мкм. Эта характерная ситуация с локализацией и потерями типична для плазмоники. Заметим, что вблизи ω_{sp} длина удержания поля в диэлектрике может достигать значений, лежащих ниже дифракционного предела, то есть половины длины волны. Непосредственно в металле в широком частотном диапазоне от видимой части спектра до инфракрасной, электромагнитное поле практически исчезает уже на расстоянии порядка 20 нм от границы раздела.

2.3. Многослойные системы

Теперь обратим наше внимание на ППП в многослойных структурах, состоящих из чередующихся проводящих и диэлектрических тонких пленок. В таких системах каждый одиночный контакт может поддерживать связанные поверхностные плазмон-поляритоны. Когда интервал между прилежащими контактами сопоставим с длиной затухания граничной волны \hat{z} или меньше, из-за взаимодействия между поверхностными плазмон-поляритонами возникают связанные моды. Чтобы понять общие свойства связанных плазмон-поляритонов, мы сосредоточимся на двух типах трехслойных структур, изображенных на рис. 2.5, в следующих конфигурациях: первая — тонкая металлическая пластинка (I) помещается между двумя (бесконечно) толстыми наружными слоями (II, III), гетероструктура диэлектрик/металл/диэлектрик (ДМД), и вторая — тонкий непроводящий внутренний слой (I) располагается между двумя металлическими пластинами (II, III), гетероструктура металл/диэлектрик/металл (МДМ).

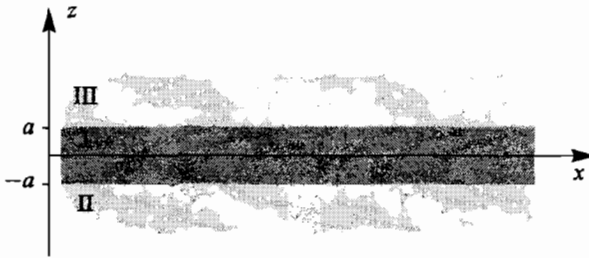


Рис. 2.5. Конфигурация трехслойной системы, состоящей из тонкого слоя I, помещенного между двумя полуплоскостями II и III

Так как мы заинтересованы лишь в связанных модах самого низкого порядка, мы начнем с рассмотрения ТМ-мод, не осциллирующих в перпендикулярном контактам направлении, с использованием уравнений (2.8). При $z > a$ мы имеем следующие компоненты поля:

$$H_y = A e^{i\beta x} e^{-k_3 z}, \quad (2.22a)$$

$$E_x = iA \frac{1}{\omega \epsilon_0 \epsilon_3} k_3 e^{i\beta x} e^{-k_3 z}, \quad (2.22b)$$

$$E_z = -A \frac{\beta}{\omega \epsilon_0 \epsilon_3} e^{i\beta x} e^{-k_3 z}, \quad (2.22c)$$

при $z < -a$:

$$H_y = B e^{i\beta x} e^{k_2 z}, \quad (2.23a)$$

$$E_x = -iB \frac{1}{\omega \varepsilon_0 \varepsilon_2} k_2 e^{i\beta x} e^{k_2 z}, \quad (2.23b)$$

$$E_z = -B \frac{\beta}{\omega \varepsilon_0 \varepsilon_2} e^{i\beta x} e^{k_2 z}. \quad (2.23c)$$

Таким образом, поля затухают экспоненциально в наружных слоях (II) и (III). Отметим, что, как и ранее, мы обозначаем компоненту волнового вектора, перпендикулярного контактам, как $k_i \equiv k_{z,i}$.

В центральной области $-a < z < a$ формулы для электрического и магнитного полей могут быть записаны в следующем виде:

$$H_y = C e^{i\beta x} e^{k_1 z} + D e^{i\beta x} e^{-k_1 z}, \quad (2.24a)$$

$$E_x = -iC \frac{1}{\omega \varepsilon_0 \varepsilon_1} k_1 e^{i\beta x} e^{k_1 z} + iD \frac{1}{\omega \varepsilon_0 \varepsilon_1} k_1 e^{i\beta x} e^{-k_1 z}, \quad (2.24b)$$

$$E_z = C \frac{\beta}{\omega \varepsilon_0 \varepsilon_1} e^{i\beta x} e^{k_1 z} + D \frac{\beta}{\omega \varepsilon_0 \varepsilon_1} e^{i\beta x} e^{-k_1 z}. \quad (2.24c)$$

Условия сшивания полей в центральной области и примыкающих контактах для H_y и E_x приводят к линейной системе четырех уравнений:

$$A e^{-k_3 a} = C e^{k_1 a} + D e^{-k_1 a}, \quad (2.25a)$$

$$\frac{A}{\varepsilon_3} k_3 e^{-k_3 a} = -\frac{C}{\varepsilon_1} k_1 e^{k_1 a} + \frac{D}{\varepsilon_1} k_1 e^{-k_1 a}, \quad (2.25b)$$

при $z = a$ и при $z = -a$:

$$B e^{-k_2 a} = C e^{-k_1 a} + D e^{k_1 a}, \quad (2.26a)$$

$$-\frac{B}{\varepsilon_2} k_2 e^{-k_2 a} = -\frac{C}{\varepsilon_1} k_1 e^{-k_1 a} + \frac{D}{\varepsilon_1} k_1 e^{k_1 a}. \quad (2.26b)$$

Кроме того, магнитное поле H_y должно удовлетворять волновому уравнению (2.8c) для трех различных областей согласно соотношениям

$$k_i^2 = \beta^2 - k_0^2 \varepsilon_i \quad (2.27)$$

для $i = 1, 2, 3$. Решение данной системы уравнений дает в результате трансцендентное уравнение, позволяющее определить дисперсионное соотношение, связывающее β и ω ,

$$e^{-4k_1 a} = \frac{k_1/\varepsilon_1 + k_2/\varepsilon_2}{k_1/\varepsilon_1 - k_2/\varepsilon_2} \frac{k_1/\varepsilon_1 + k_3/\varepsilon_3}{k_1/\varepsilon_1 - k_3/\varepsilon_3}. \quad (2.28)$$

Отметим, для толщины центральной области стремящейся к бесконечности ($a \rightarrow \infty$), выражение (2.28) сводится к виду (2.12) и представляет собой уравнения для двух несвязанных поверхностных плазмон-поляритонов на соответствующих границах раздела.

Рассмотрим интересный специальный случай, когда нижний и верхний слои (II) и (III) имеют одинаковую диэлектрическую проницаемость, т. е. $\varepsilon_2 = \varepsilon_3$, а следовательно, $k_2 = k_3$. В этом случае дисперсионное уравнение (2.28) можно разбить на два уравнения, а именно:

$$\operatorname{th} k_1 a = -\frac{k_2 \varepsilon_1}{k_1 \varepsilon_2}, \quad (2.29a)$$

$$\operatorname{th} k_1 a = -\frac{k_1 \varepsilon_2}{k_2 \varepsilon_1}. \quad (2.29b)$$

Легко видеть, что уравнение (2.29a) определяет моду с поляризацией ($E_x(z)$ — нечетная, $H_y(z)$ и $E_z(z)$ — четные функции), тогда как уравнение (2.29b) определяет моду с поляризацией ($E_x(z)$ — функция четная, $H_y(z)$ и $E_z(z)$ — нечетные).

Для исследования связанных поверхностных плазмон-поляритонных мод используем дисперсионные соотношения (2.29a), (2.29b) к ДМД- и МДМ-структурам. Для начала рассмотрим ДМД-структуру — помещенную между двумя изолирующими слоями тонкую металлическую пленку толщиной $2a$. В данном случае $\varepsilon_1 = \varepsilon_1(\omega)$ — диэлектрическая функция металла, а ε_2 — положительная реальная диэлектрическая константа непроводящих нижнего и верхнего слоев. В качестве примера на рис. 2.6 приведено дисперсионное соотношение нечетных и четных мод (2.29a), (2.29b) в конфигурации воздух/серебро/воздух при двух разных толщинах тонкой серебряной пленки. Для простоты на рисунке диэлектрическая проницаемость серебра была взята в модели Друде при пренебрежимо малом затухании ($\varepsilon(\omega)$ — действительная и имеет форму (1.22)), так что $\operatorname{Im}[\beta] = 0$.

Как следует из рисунка, частоты ω_+ нечетных мод выше соответствующих частот для одиночной границы раздела поверхностных плазмон-поляритонов, также выше частот ω_- четных мод. Для больших волновых векторов β (и $\operatorname{Im}[\varepsilon(\omega)] = 0$), предельные частоты равны:

$$\omega_+ = \frac{\omega_p}{\sqrt{1 + \varepsilon_2}} \sqrt{1 + \frac{2\varepsilon_2 e^{-2\beta a}}{1 + \varepsilon_2}}, \quad (2.30a)$$

$$\omega_- = \frac{\omega_p}{\sqrt{1 + \varepsilon_2}} \sqrt{1 - \frac{2\varepsilon_2 e^{-2\beta a}}{1 + \varepsilon_2}}. \quad (2.30b)$$

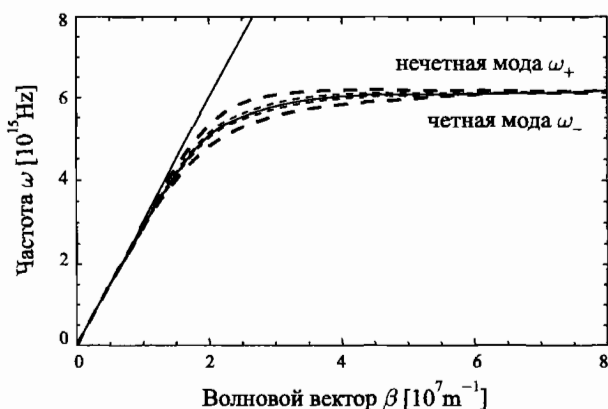


Рис. 2.6. Дисперсионное соотношение для связанных нечетных и четных мод для многослойной структуры воздух/серебро/воздух с металлическим ядром толщиной 100 нм (серые пунктирные линии) и 50 нм (черные пунктирные линии). Также на рисунке изображена дисперсионная кривая одиночной границы раздела серебра/воздух (серая линия). Диэлектрическая проницаемость серебра взята в модели Друде в пренебрежении затухания

Нечетные моды обладают интересным свойством: при уменьшении толщины металлической пленки запыриание связанных поверхностных плазмон-поляритонов в металлической пленке растет вместе с тем, как мода превращается в плоскую волну, поддерживаемую однородной непроводящей средой. Для реальных поглощающих металлов с комплексной проницаемостью $\varepsilon(\omega)$ это подразумевает увеличение дальности распространения поверхностных плазмон-поляритонов [Sarid, 1981]. Эта ситуация с поверхностными плазмон-поляритонами будет обсуждаться в главе 7. Четные моды демонстрируют иное поведение — запыриание их в металле возрастает при уменьшении толщины металлической пленки, что приводит к снижению дальности распространения.

В МДМ-конфигурации мы принимаем $\varepsilon_2 = \varepsilon_2(\omega)$ за диэлектрическую проницаемость металла, ε_1 — диэлектрическую проницаемость диэлектрика в уравнениях (2.29a), (2.29b). С точки зрения удержания энергии наиболее интересной модой является основная нечетная мода, которая не демонстрирует затухания (отсечки) при уменьшении толщины срединного слоя [Prade et al., 1991]. На рис. 2.7 показано дисперсионное соотношение такой моды для структуры серебро/воздух/серебро. Диэлектрическая проницаемость $\varepsilon(\omega)$ бралась комплексным числом в соответствии с данными, полу-

ченными Джонсоном и Кристи для серебра [Johnson and Christy, 1972]. Таким образом, волновой вектор β остается всегда конечным, дисперсионная кривая имеет точку разворота и может пересечь дисперсионную линию, соответствующую свету в воздухе, что выполняется для поверхностных плазмон-поляритонов распространяющихся вдоль одиночной границы раздела серебро/воздух.

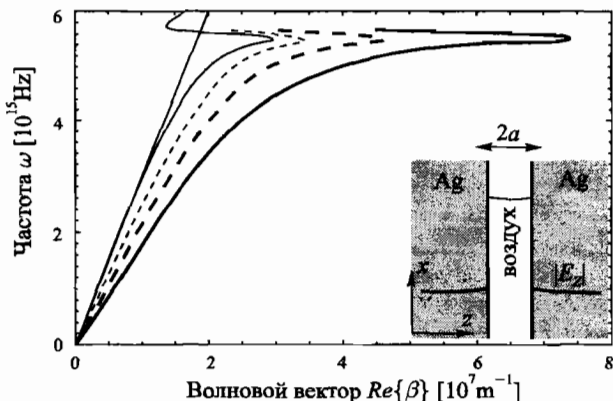


Рис. 2.7. Дисперсионное соотношение связанных поверхностных плазмон-поляритонных мод многослойной структуры серебро/воздух/серебро при размере воздушного ядра 100 нм (прерывистая серая кривая), 50 нм (прерывистая черная кривая), и 25 нм (сплошная черная кривая). Также на рисунке изображена дисперсионная кривая для поверхностных плазмон-поляритонов на границе одиночного контакта серебро/воздух (серая кривая) и тонкая линия для света в воздухе (серая прямая линия)

Очевидно, что даже при возбуждении значительно ниже ω_{sp} можно достичь больших значений постоянной распространения β при условии достаточно малой ширины непроводящего ядра. Возможность достигать при установке конфигурации таких больших значений волнового вектора и, таким образом, малых длин проникновения \hat{z} в металлические слои указывает на то, что локализационные эффекты, которые для одиночной границы раздела контактов могут поддерживаться лишь при близких к ω_{sp} возбуждениях, могут быть также достигнуты для МДМ-структур при возбуждениях вне инфракрасного спектра. Анализ других МДМ-структур например, концентрических оболочек, приводит к аналогичным результатам [Takahara et al., 1997]. Легко изготавливаемые конфигурации, такие как треугольные металлические V-образные выемки на плоской металлической поверхности,

могут быть использованы для применения в области волноводного распространения, которое будет представлено в главе 7.

Мы свели наше обсуждение связанных плазмон-поляритонов в трехслойных структурах к основным связанным модам системы, с перспективой применения в области волноводного распространения и удержания электромагнитной энергии. Необходимо отметить, что поддерживаемое данной конфигурацией семейство мод намного шире, чем было описано в настоящей главе. Например, для ДМД-структур мы опустили обсуждение мод утечки, а МДМ-слои могут также демонстрировать осциллирующие моды при достаточной толщине диэлектрического ядра. Дополнительно скажем связь между поверхностными плазмон-поляритонами на двух границах раздела контактов ядро/оболочка существенно меняется при различных диэлектрических постоянных нижнего и верхнего слоев, так что $\varepsilon_2 \neq \varepsilon_3$, что препятствует фазовому синхронизму между расположенными на двух контактах модами. Детальное рассмотрение этих случаев можно найти в [Ekonomoу, 1969; Burke and Stegeman, 1986; Prade et al., 1991].

2.4. Удержание энергии и эффективная длина волны

В главе 5 мы покажем, что при использовании в металлических наночастицах локализованных поверхностных плазмонов электромагнитную энергию можно ограничить или сжать до объемов, меньших, чем дифракционный предел $(\lambda_0/2n)^3$, где $n = \sqrt{\varepsilon}$ есть показатель преломления окружающей среды. Такая высокая степень удержания ведет к увеличению сопутствующего поля и представляет огромное значение для плазмоники, так как дает начало большому разнообразию прикладных исследований для оптического считывания, что будет обсуждаться в главе 8. В существенно одномерных устройствах, рассмотренных выше и поддерживающих распространение поверхностных плазмон-поляритонов, также возможна локализация энергии ниже дифракционного предела, перпендикулярного границе (границам) раздела двух сред. Этот факт уже упоминался, когда утверждалось, что длина распространения поля \hat{z} в диэлектрических слоях может быть значительно меньше, чем λ_0/n .

К измерению пространственной области локализации энергии поля следует подходить достаточно осторожно, так как длина \hat{z} локализации поля, размер которой меньше длины волны, на границе раздела двух сред подразумевает, что значительная часть энергии поля поверхностной плазмон-поляритонной моды сосредоточена внутри металла. Эта энергия должна учитываться при использовании уравнения (1.38) при вычислении распределения плотности электрической энергии в пространстве, так как для

определения силы взаимодействия между излучением и веществом (например, одна молекула, находящаяся в поле) знание напряженности поля имеет значение. Возьмем в качестве примера МДМ-гетероструктуру золото/воздух/золото; на рисунке 2.8(а) показана зависимость действительной и мнимой части β для основной поверхностной плазмон-поляритонной моды в зависимости от размера щели при возбуждении на длине волны $\lambda_0 = 850$ нм, в расчетах использовалась функция Друде для золота [Johnson and Christy, 1972; Ordal et al., 1983]. При изменении размера щели, мода приобретает электронно-плазменный характер, при котором электромагнитная энергия локализуется в большей степени в металлических полупространствах. График энергии электрического поля внутри металлического полупространства изображен на рис. 2.8(в) при длинах волн $\lambda_0 = 600$ нм, 850 нм, 1,5 мкм, 10 мкм и 100 мкм ($= 3$ ТГц). К примеру, для щели размером 20 нм с длиной волны $\lambda_0 = 850$ нм доля энергии достигает уже 40%. Отметим, размер щели берется в относительных единицах к длине волны в свободном пространстве. Очевидно, вместе с возрастающей локализацией поля к границе раздела контакта золото/воздух происходит перераспределение энергии в области металла для возбуждений с частотой, близкой к ω_{sp} .

Для определения перераспределения энергии моды, локализованной в металлической оболочке и диэлектрической щели, мы можем определить длину эффективной моды L_{eff} (по аналогии с объемом эффективных мод V_{eff} , который используется для определения взаимодействия между излучением и веществом в квантовой электродинамике [Andreani et al., 1999]) с помощью соотношения

$$L_{\text{eff}}(z_0)u_{\text{eff}}(z_0) = \int u_{\text{eff}}(z)dz, \quad (2.31)$$

$u_{\text{eff}}(z_0)$ — плотность энергии поля как функция текущей координаты z_0 внутри воздушной щели. Поэтому при таком одномерном представлении длина эффективной моды представлена как отношение полной энергии поверхностного плазмон-поляритона к плотности энергии (энергия на единицу длины) в интересующей позиции, в качестве которой обычно выбирают координату, в которой плотность энергии максимальна. Таким образом, в рассматриваемом случае величина эффективной длины определяется по отношению поля возбуждения к энергии поверхностного плазмон-поляритона. Подробности можно найти в книге [Maier, 2006b].

Определение эффективной длины моды в МДМ позволяет сделать анализ соотношения между полем и поверхностным плазмон-поляритоном в зависимости от размера щели. Рис. 2.8(в) показывает изменение эффективной длины \bar{L}_{eff} (нормированная к длине волны в свободном простран-

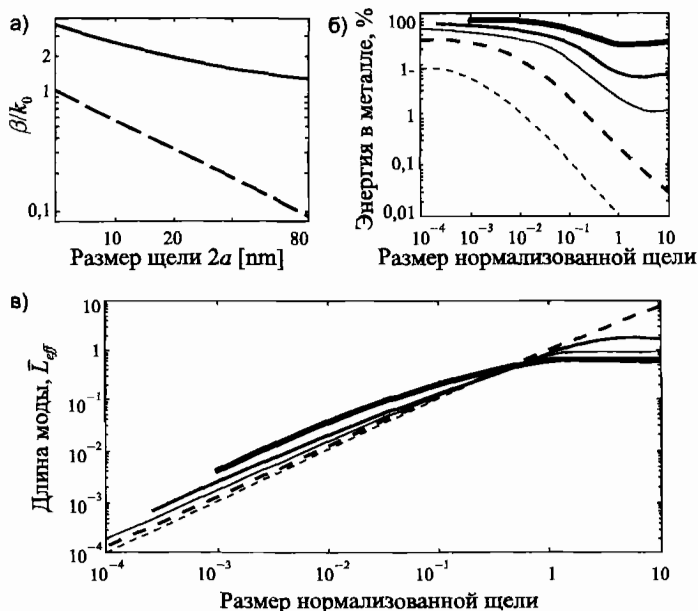


Рис. 2.8. Удержание поля в МДМ-структуре золото/воздух/золото. (а) Действительная (сплошная кривая) и мнимая (штриховая кривая) части коэффициента распространения β в зависимости от размера щели при $\lambda_0 = 850$ нм. (б) Доля энергии электрического поля, приходящаяся на металлические полупространства, как функция относительного размера щели для возбуждений при $\lambda_0 = 600$ нм (толстая кривая), 850 нм (тонкая кривая), 1,5 мкм (серая кривая), 10 мкм (пунктирная черная кривая) и 100 мкм (пунктирная серая кривая). (в) Эффективная длина моды L_{eff} , отнесенная к длине волны в свободном пространстве λ_0 , как функция размера щели. Взято из [Maier, 2006b]

стве λ_0) относительно размера щели. Координата z_0 находится на границе воздух/золото, где напряженность электрического поля максимальна. Уменьшение длины моды меньше $\lambda_0/2$ показывает, что плазмонные структуры действительно могут поддерживать как *эффективные*, так и *физические* длины мод с размерами ниже дифракционного предела светового излучения. Длина L_{eff} на рисунке растет с увеличением размера щели. Для относительно больших размеров и низких частот это происходит из-за делокализованной природы поверхностного плазмона, что ведет к меньшим размерам мод для возбуждений, близких к частоте поверхностного плазмона ω_{sp} .

По мере приближения к точке, в которой дисперсионная кривая поверхностной плазмон-поляритонной моды опрокидывается (см. рис. 2.7), а энергия поля локализуется в металлических полупространствах, непрерывное преобразование длины моды происходит из-за роста локализации поля к границе контакта металл–воздух. В этом режиме возбуждения более низкие частоты демонстрируют меньшие длины мод для такого же нормированного размера щели, чем близкие к плазмонному резонансу, и тем большее количество энергии концентрируется внутри металла. Отметим, что для очень маленьких интервалов при $2a < 2$ нм из-за незранированных поверхностных электронов эффекты нелокальных полей становятся значительными [Larkin et al., 2004], что приводит к дальнейшему уменьшению L_{eff} . Для объяснения этих фактов необходимо привлечь методы, рассмотренные которых выходит за рамки вышеизложенной теории.

Итак, мы показали, что несмотря на проникновение значительного количества энергии поверхностной плазмон-поляритонной моды в проводящую среду (для возбуждения близкого к ω_{sp} или в структурах с малой щелью), большие значения коэффициента распространения β гарантируют уменьшение эффективной длины, перпендикулярной границе/границам раздела контактов, значительно ниже дифракционного предела.

ГЛАВА 3

Возбуждение поверхностных плазмон-поляритонов на плоских границах раздела сред

Поверхностные плазмон-поляритоны, распространяющиеся вдоль плоской границы раздела между проводником и диэлектриком, представляют собой двумерные электромагнитные волны. Локализация волны обеспечивается, поскольку в диэлектрике реальная часть волнового вектора β больше мнимой части волнового вектора k , это приводит к пространственному затуханию волны в направлении, перпендикулярном (в обе стороны) к границе раздела. Дисперсионная кривая ППП лежит справа от дисперсионной кривой объемной волны диэлектрика (в объеме дисперсионное соотношение для волн $\omega = ck$), и без применения специальных методов фазового синхронизма возбуждение световыми пучками плазмон-поляритонов в рассматриваемом случае невозможно. В качестве альтернативы могут быть использованы тонкослойные структуры, такие как гетероструктуры диэлектрик–металл–диэлектрик, в которых существуют ППП и имеет место связь между волнами в продольном направлении, в этом случае возбуждение возможно через пространственное согласование мод и фазовый синхронизм.

В данной главе будут рассмотрены различные способы возбуждения поверхностных плазмон-поляритонов. Наряду с возбуждением волн с помощью пучка заряженных частиц, будут рассмотрены различные методы возбуждения с применением фазового синхронизма, методов призмного и решеточного вводов и возбуждение с использованием фокусированных пучков. Также мы обсудим возможность получения волновых векторов, значение которых превышает $|k|$, с помощью излучения в ближнем поле с использованием затухающих волн в непосредственной близости от апертуры для масштабов меньше длины световой волны. В заключении данной главы будет представлен краткий обзор возбуждения ППП в волноводах из наночастиц и многослойных структур с использованием оптоволоконных наконечников и способов пограничного возбуждения. Это позволяет

обеспечить согласование ППП с модами в обычных диэлектрических волноводах. Способы возбуждения и исследования локализованных плазмонов в металлических наноструктурах, различные виды микроскопии и катодной люминесценции будут представлены в главе 10.

3.1. Возбуждение пучком заряженных частиц

Поверхностные плазмоны — электромагнитные поверхностные моды с частотой ω_{sp} , определяемой уравнением (2.21), — были теоретически предсказаны для наблюдения в экспериментах по энергетическим потерям пучка электронов, дифрагирующих на тонкой металлической пленке [Ritchie, 1957].

В экспериментах, помимо ожидаемых потерь энергии $\hbar\omega_p$ электронов на объемных плазмонах, были обнаружены потери энергии электронов $\hbar\omega_p\sqrt{2}$, названные впоследствии *низкоэнергетическими потерями*. Метод энергетических потерь при дифракции электронов на металлических пленках традиционно применялся для возбуждения продольных объемных плазмонов, Пауэлл и Сван наблюдали дополнительный пик в спектре потерь энергии на магнии и алюминии (см. рис. 3.1) [Powell and Swan, 1960]. В процессе проведения эксперимента наблюдалось смещение дополнительного пика в сторону меньших энергий, данный эффект объясняется тем, что по ходу эксперимента электромагнитные возбуждения на поверхности металл/воздух постепенно переходили в возбуждения на границе раздела металл/оксид. В экспериментах было показано: потеря энергии электронов на величину $\hbar\omega_p\sqrt{2}$ действительно происходит из-за поверхностного возбуждения, ранее предсказанного в работе Ритчи, поверхностных плазмонов на границе раздела металл/воздух и соответствует поверхностному возбуждению плазмона, рассмотренному в предыдущей главе. Более поздние исследования поверхностных плазмонов в экспериментах по измерению энергетических потерь электронов подтвердили формулу $\omega_{sp} = \frac{\omega_p}{\sqrt{1+\epsilon}}$ зависимости частоты от диэлектрических свойств покрытия (объяснив тем самым влияние оксидного слоя), а также существование в металлических пленках четных и нечетных связанных мод, рассмотренных нами в уравнении (2.29) [Stern and Ferrell, 1960].

Если в экспериментах по дифракции электронов с малой энергией обнаруживаются возбуждения поверхностных плазмонов на энергетическом уровне $\hbar\omega_{sp}$, то анализ изменения энергии и импульса быстрых электронов, пропускаемых сквозь тонкие металлические пленки, позволяет исследовать полностью дисперсионное соотношение для ППП.

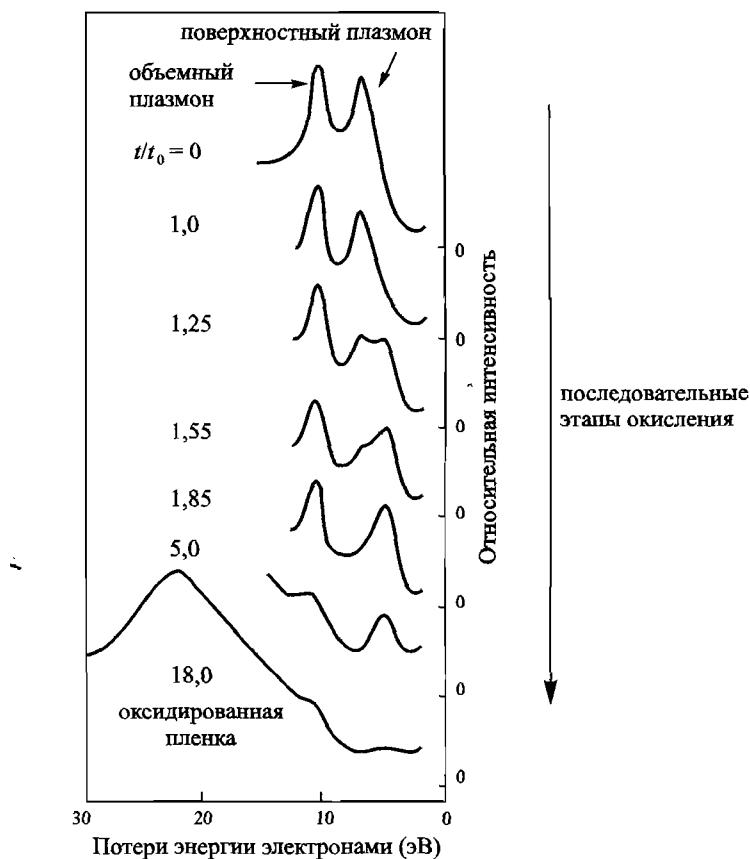


Рис. 3.1. Спектры потери энергии электронов в тонкой магниевой пленке для последовательных этапов окисления [Powell и Swan, 1960]. © American Physical Society, 1960. Используется с разрешения правообладателя

Использование данного подхода в более ранних исследованиях позволило проанализировать дисперсию ППП, включая частоты выше ω_p [Vincent and Silcox, 1973; Pettit et al., 1975]. В работе Петти с коллегами было показано для электронного пучка с энергией 75-KeV расщепление ППП на четные и нечетные моды в тонкой (16 нм) оксидированной алюминиевой пленке [Pettit et al., 1975].

Используя спектрометр с фильтром Вина, можно восстановить дисперсионное соотношение из данных, представленных на рис. 3.2. Яркое

пятно в центре соответствует нерассеянному электронному пучку, а две горизонтальные линии — объемному возбуждению плазмонов (верхняя линия) и упругому рассеянию (нижняя линия). Как следует из рис. 3.3, имеет место дисперсия высоко- и низкочастотных мод ω_+ и ω_- .

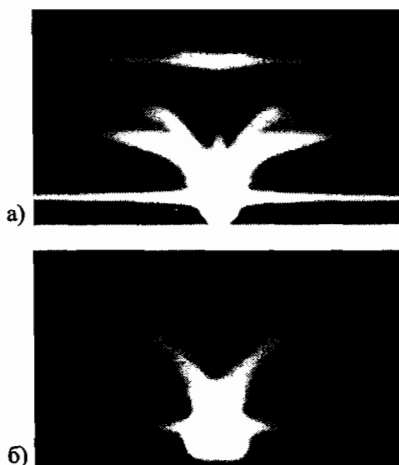


Рис. 3.2. Влияние дисперсии ППП на рассеяние электронов при прохождении электронного пучка с энергией 75 Кев через алюминиевую пленку толщиной 16 нм при нормальном падении. Время экспозиции — (а) 15 мин и (б) 3 мин [Pettit et al., 1975]. © American Physical Society, 1975. Используется с разрешения правообладателя

3.2. Призменный ввод

Возбуждение поверхностных плазмон-поляритонов световыми пучками на плоских границах раздела металл/диэлектрик невозможно, так как $\beta > k$, где k — волновой вектор света на границе раздела со стороны диэлектрика. Очевидно, что проекция волнового вектора падающих под углом θ фотонов $k_x = k \sin \theta$ на нормаль к поверхности всегда меньше, чем коэффициент распространения β даже при скользющем падении фотонов. Мы уже рассмотрели эту ситуацию подробно, когда отмечали, что дисперсионная кривая ППП (2.14) лежит вне светового конуса для диэлектрика.

Можно добиться фазового синхронизма ППП в трехслойной структуре, состоящей из тонкой металлической пленки, помещенной между двумя диэлектриками с различными диэлектрическими проницаемостями. Для упрощения ситуации предположим, что один из диэлектриков — воздух

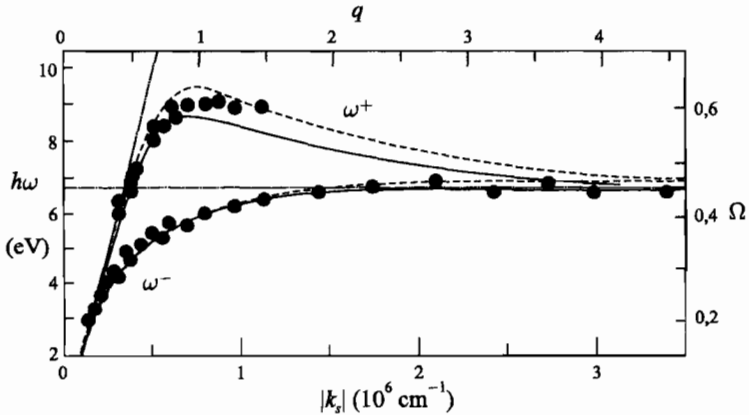


Рис. 3.3. Сопоставление экспериментальных данных (точки), представленных на рис. 3.2, с теоретическими расчетами по дисперсионным соотношениям двух связанных мод. Данные для теоретических расчетов представлены на рис. 2.6. Для расчетов были сделаны предположения: алюминиевая пленка контактирует с аморфным оксидом алюминия (пунктирные линии) или оксидом алюминия в α -фазе (сплошные линии) [Pettit et al., 1975]. © American Physical Society, 1975. Используется с разрешения правообладателя

($\varepsilon = 1$). Луч, который отражается от границы раздела между диэлектриком, являющимся призмой с диэлектрической проницаемостью ε (см. рис. 3.4), и металлом, будет иметь импульс в плоскости $k_x = k\sqrt{\varepsilon} \sin \theta$, достаточный для возбуждения ППП на границе раздела между металлом и диэлектриком с более низкой диэлектрической проницаемостью, т. е. в нашем случае — на границе раздела металл/воздух. Таким образом, обеспечивается возбуждение ППП с коэффициентом распространения β , лежащим между дисперсионными кривыми воздуха и диэлектрика (см. рис. 3.5). Возбуждение ППП проявляется в изменении интенсивности отраженного пучка. Отметим, что достижение фазового синхронизма ППП на границе раздела призма/металл невозможно, так как соответствующая дисперсионная кривая ППП лежит вне светового конуса призмы (рис. 3.5).

Следовательно, рассмотренная схема, в которой нарушается полное внутреннее отражение, приводит к туннелированию полей на границе раздела металл/воздух, где и происходит возбуждение ППП.

Призменное соединение может иметь две различные геометрии, которые показаны на рис. 3.4. Наиболее простая конфигурация была предложена в работе [Kretschmann and Raether, 1968], в которой тонкая металли-

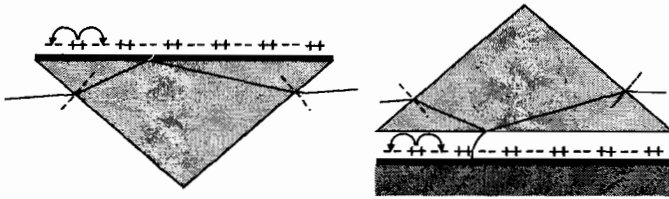


Рис. 3.4. Метод призмного ввода для возбуждения ППП с использованием нарушенного полного внутреннего отражения в конфигурациях Кречмана (слева) и Отто (справа). Также на рисунках схематически изображены вероятные каналы для возбуждения

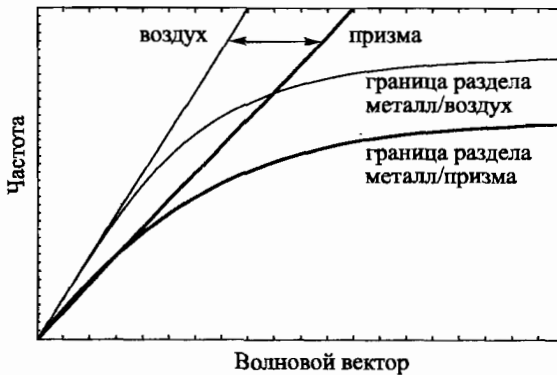


Рис. 3.5. Дисперсия ППП для призмного ввода. Доступны лишь коэффициенты распространения между тонкими линиями воздуха и призмы (обычно стеклянной), что приводит к дополнительному затуханию ППП из-за излучения в призму; возбужденные ППП имеют коэффициенты распространения внутри светового конуса призмы

ческая пленка напыляется на стеклянную призму. Фотоны из потока, отражающегося от стеклянной стороны под углом, большим, чем критический угол, проходят сквозь металлическую пленку и возбуждают ППП на границе раздела металл/воздух. Другая геометрия — конфигурация, предложенная в работе [Otto, 1968], в этой геометрии призма отделена от металлической пленки тонким воздушным зазором. Полное внутреннее отражение возникает на границе раздела призма/воздух, возбуждая ППП через туннелирование на границе раздела воздух/металл. Эта конфигурация предпочтительна при нежелательности прямого контакта с металлической поверхностью (например для изучения состояния поверхности).

Подчеркнем, что ППП, возбуждаемые с помощью фазового синхронизма для $\beta = k\sqrt{\varepsilon} \sin \theta$, являются *вторичными волнами* и теряют энергию не только из-за собственного поглощения внутри металла, но также из-за утечки излучения внутрь призмы: коэффициент распространения волны лежит в пределах светового конуса призмы (рис. 3.5). Минимум интенсивности отраженного луча возникает вследствие интерференции излучения дифракционных потерь и отраженной части возбуждающего пучка. В случае оптимальной толщины металлической пленки интерференция может обеспечить обращение в ноль интенсивности отраженного луча.

Анализируя данную ситуацию по уравнениям Френеля, [Kretschmann, 1971; Raether, 1988] показали, это оптимальное значение достигается при равенстве коэффициента затухания Γ_{LR} , вызванного излучением дифракционных потерь, и Γ_{abs} , вызванного поглощением, $\Gamma_{abs} = \text{Im}[\beta_0]$, где β_0 — это коэффициент распространения ППП на одиночной границе раздела, вычисленной по формуле (2.14). Для металлического слоя с диэлектрической проницаемостью $\varepsilon_1(\omega)$, удовлетворяющей неравенствам $|\text{Re}[\varepsilon_1]| \gg 1$ и $|\text{Im}[\varepsilon_1]| \ll |\text{Re}[\varepsilon_1]|$, коэффициент отражения может быть аппроксимирован функцией Лоренца:

$$R = 1 - \frac{4\Gamma_{LR}\Gamma_{abs}}{[\beta - (\beta_0 + \Delta\beta)]^2 + (\Gamma_{LK} + \Gamma_{abs})^2}. \quad (3.1)$$

Очевидно, что коэффициент распространения ППП β в системе призма/металл/воздух изменяется на величину $|\text{Re}[\Delta\beta]|$ относительно величины β_0 на одиночной границе раздела. Мнимая часть $\text{Im}[\Delta\beta] \equiv \Gamma_{LK}$ определяет вклад затухания в суммарные потери. Значение $\Delta\beta$, зависящее от толщины металлического слоя [Kretschmann, 1971; Raether, 1988], может быть оценено из расчета коэффициентов отражения по Френелю.

Метод призмного ввода также подходит для возбуждения связанных мод ППП в МДМ- или ДМД-трехслойных системах. Это достигается с использованием соответствующих масел для согласования коэффициентов преломления приведенных в контакт с призмой ДМД-структур масло/серебро/кремний, а также масло/алюминий/кремний, при этом удается добиться возбуждения как высокочастотной моды ω_+ , так и низкочастотной моды ω_- с малым и большим коэффициентами затухания [Quail et al., 1983]. Для моды с малым коэффициентом затухания было подтверждено уменьшение минимума отражения на порядок по сравнению с несвязанной модой на одиночной границе раздела. Это происходит из-за уменьшения потерь в металлической пленке, а следовательно, и уменьшения коэффициента затухания связанных ППП.

3.3. Решеточный ввод

Рассогласование между проекцией волнового вектора $k_x = k \sin \theta$ падающих фотонов и β также может быть преодолено, если на металлическую поверхность нанести дифракционную решетку с неглубокими штрихами или отверстиями с периодом решетки a . Для простой одномерной дифракционной решетки, изображенной на рис. 3.6, фазовый синхронизм достигается при выполнении условия

$$\beta = k \sin \theta \pm vg, \quad (3.2)$$

где $g = 2\pi/a$ — вектор обратной решетки, а $v = 1, 2, 3 \dots$. Как и в случае призмного ввода, возбуждение ППП определяется через минимум интенсивности отраженного света.

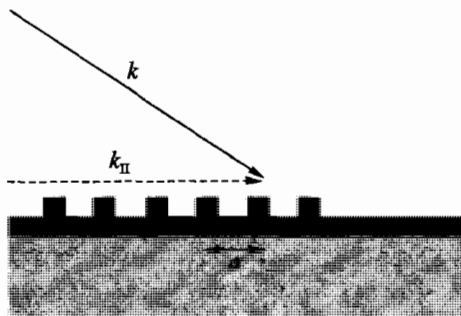


Рис. 3.6. Фазовый синхронизм света для ППП при использовании дифракционной решетки

Также может реализоваться и обратный процесс: распространяющиеся вдоль поверхности, модулированной с помощью дифракционной решетки, ППП могут взаимодействовать со светом и, следовательно, испускать излучение. Дифракционные решетки должны быть вырезаны непосредственно в металлической поверхности и в тоже время могут состоять из диэлектрического материала. Например, Парк с коллегами продемонстрировал возбуждение ППП с помощью дифракционной решетки с диэлектрическим покрытием глубиной всего в несколько нанометров с эффективностью порядка 50% [Park et al., 2003]. Меняя форму дифракционной решетки, можно повлиять на направление распространения ППП и даже можно достичь фокусировки, что продемонстрировал Офферхауз с коллегами, применив способ неколлинеарного фазового синхронизма [Offerhaus et al., 2005]. Другие

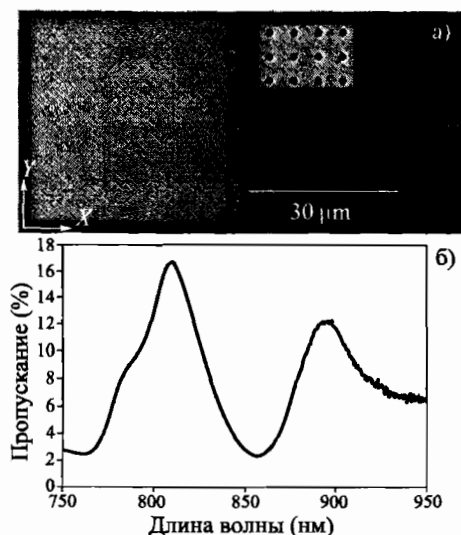


Рис. 3.7. (а) Изображение двух сеток микроотверстий с периодом 760 нм и диаметром отверстия 250 нм, расположенных на расстоянии 30 мкм, полученное с помощью сканирующей электронной микроскопии (СЭМ) и используемое для получения (правая решетка) и зондирования (левая решетка) ППП. Крупный план отверстий показан на отдельной вкладке. (б) Спектр пропускания решеток при нормальном падении белого света [Devaux et al., 2003]. © American Institute of Physics, 2003. Используется с разрешения правообладателя

исследования по возбуждению ППП с помощью модулированных поверхностей будут представлены в главе 7.

В качестве примера возбуждения ППП и их вывода через дифракционные решетки на рис. 3.7(а) показано полученное с помощью сканирующей электронной микроскопии (СЭМ) изображение плоской металлической пленки, на которую нанесены две сетки отверстий с размером отверстия меньше длины волны [Devaux et al., 2003]. В этих экспериментах малая сетка (справа) использовалась для возбуждения ППП под действием нормально падающего излучения, тогда как большая сетка (слева) использовалась для вывода ППП в непрерывный спектр.

Длина волны фазового синхронизма определяется через спектр пропускания при нормальном падении, в данном случае при $\lambda = 815$ нм, вследствие возбуждения моды ППП на границе раздела металл/воздух (рис. 3.7(б)). Оптические изображения ближнего поля возбуждения и области выявления, а также распространения ППП показаны на рис. 3.8. Полоса

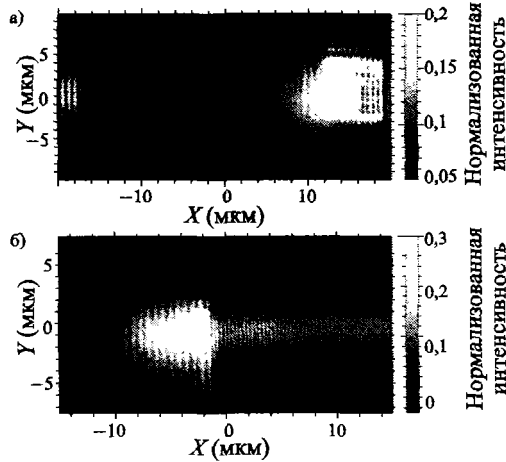


Рис. 3.8. (а) Ближнеполевое оптическое изображение, полученное с помощью сеток, представленных на рис. 3.7; освещающий лазер сфокусирован на малой сетке (справа) с поляризованным по абсциссе электрическим полем. (б) Вид изображения (а), демонстрирующий распространение ППП и край левой выходной решетки. Длина волны $\lambda = 800$ нм была выбрана таким образом, чтобы она совпала с пиком пропускания в воздушной зоне (см. рис. 3.7) [Devaux et al., 2003]. © American Institute of Physics, 2003. Используется с разрешения правообладателя

между двумя сетками соответствует распространяющимся ППП, показывая быстрое затухание при столкновении с используемой для разделения левой сеткой отверстий.

Для одномерных дифракционных решеток существенные изменения дисперсионного соотношения ППП возникают, если решетка достаточно глубокая, настолько, что модуляция больше не может рассматриваться как малое возмущение на плоской границе раздела. Запрещенная зона соответствующей ширины возникает уже при глубине штриха металлической дифракционной решетки порядка 20 нм. Для больших глубин локализованные моды внутри штрихов приводят к большим искажениям, спектра на границе зоны Бриллюэна, что обеспечивает возможность для связи, даже для решеток с малым шагом $a < \lambda/2$, при нормальном падении луча вследствие понижения частоты модифицированной дисперсионной характеристики ППП. Для получения дополнительной информации по данным эффектам необходимо обратиться к исследованию [Hooper and Sambles, 2002]. Влияние структуры поверхности на дисперсию ППП также будет более подробно рассматриваться в главе 6, посвященной ППП в области низких частот.

В более общем смысле ППП также могут возбуждаться на пленках в зонах со случайной поверхностной шероховатостью или искусственными локализованными рассеивателями. Компоненты импульса Δk_x обеспечиваются вследствие рассеяния, так что возможно выполнение условия фазового синхронизма, имеющего вид

$$\beta = k \sin \theta \pm \Delta k_x. \quad (3.3)$$

Эффективность связи можно оценить, например, путем измерения излучения дифракционных потерь в стеклянной призме, расположенной под металлической пленкой, что продемонстрировал Dittbacher с коллегами для плоской пленки с небольшим количеством гребней для достижения связывания нормально падающего луча и распространяющихся ППП [Dittbacher et al., 2002]. Отметим, что уравнение (3.3) подразумевает, что случайная поверхностная шероховатость также создает дополнительный канал для распространения ППП за счет образования случайных связей.

3.4. Возбуждение с использованием фокусированных оптических пучков

Как вариант традиционного метода призмного ввода, описанного в разделе 3.2, для возбуждения ППП можно использовать объектив микроскопа с высокой апертурой. На рис. 3.9 показана стандартная схема, предложенная в работе [Bouhelier and Wiederrecht, 2005]. Масляно-иммерсионный объектив касается стеклянной подложки тонкой металлической пленки (с коэффициентом преломления n) через слой иммерсионного масла для согласования коэффициентов преломления. Высокое значение апертуры объектива обеспечивает значительный угловой разброс сфокусированного возбуждающего пучка, включая углы $\theta > \theta_c$, большие, чем значение критического угла полного внутреннего отражения на границе раздела стекло/воздух.

Таким образом, волновые векторы $k_x = \beta$ необходимы для условия фазового синхронизма ППП на границе раздела металл/воздух под соответствующим углом $\theta_{\text{ППП}} = \arcsin(\beta/nk_0) > \theta_c$. Более того, внеосевой вход возбуждающего луча в объектив может гарантировать распределение интенсивности преимущественно вокруг $\theta_{\text{ППП}}$, уменьшая таким образом количество непосредственно проходящего и отраженного света. Сфокусированный луч обеспечивает возможность для локализованного возбуждения в дифракционно-ограниченной площадке.

Возбужденные ППП будут излучаться обратно в стеклянную подложку в виде дифракционных потерь для углов $\theta_{\text{ППП}} > \theta_c$, которые можно собрать

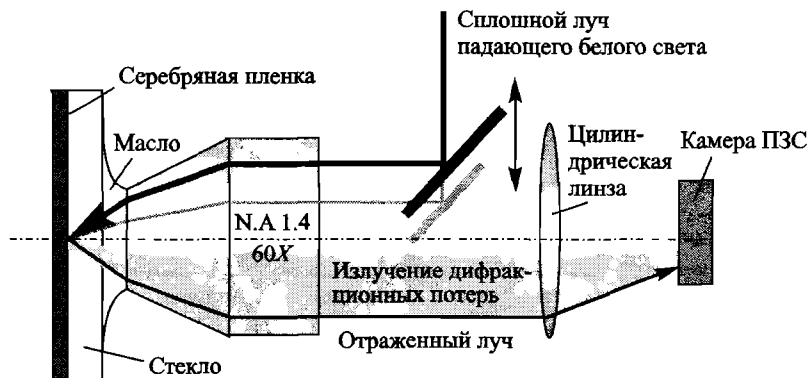


Рис. 3.9. Схематическое изображение возбуждения белым светом ППП и наблюдение путем улавливания излучения дифракционных потерь с помощью линзы и иммерсионного масла для согласования коэффициентов преломления [Bouhelier and Wiederrecht, 2005]. © Optical Society of America, 2005. Используется с разрешения правообладателя

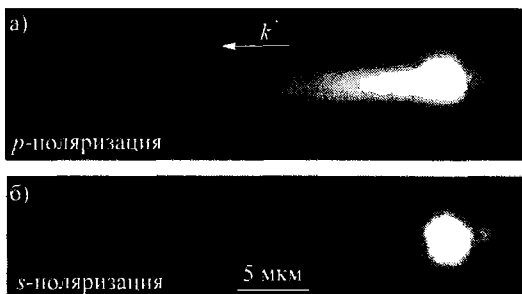


Рис. 3.10. (а) Распределение интенсивности дифракционных потерь для ТМ-поляризованного луча белого света, демонстрирующее распространение ППП вдали от точки возбуждения. (б) Для ТЕ-поляризации возбуждение ППП не наблюдается [Bouhelier and Wiederrecht, 2005]. © Optical Society of America, 2005. Используется с разрешения правообладателя

через слой иммерсионного масла посредством объектива. На рис. 3.10 показаны изображения излучения дифракционных потерь для ППП, возбуждаемых с помощью белого света, показывающие путь возбужденных ППП (только при ТМ-поляризации), т. к. интенсивность излучения дифракционных потерь пропорциональна интенсивности самих ППП. Эта схема особенно удобна для возбуждения ППП при различных частотах и последующего определения дальности их распространения.

3.5. Возбуждение в ближнем поле

Схемы ввода, например, призмный или решеточный способ, приводят к ППП на видимой невооруженным глазом области в виде пятна (дифракционно-ограниченного), определяемого длиной волны λ . В отличие от этого, метод оптической микроскопии ближнего поля позволяет достичь локального возбуждения ППП на участке $a \ll \lambda_0$ и, таким образом, может действовать как точечный источник ППП [Necht et al., 1996]. На рис. 3.11 представлена стандартная геометрия: небольшой наконечник зонда с апертурой размером $a \lesssim \lambda_{spp} \lesssim \lambda_0$ освещает поверхность металлической пленки в ближнем поле. Ввиду малого размера апертуры световой луч, выходящий из наконечника, будет иметь компоненты волнового вектора $k \gtrsim \beta \gtrsim k_0$, что обеспечивает возможность фазогласованного возбуждения ППП с коэффициентом распространения. Ввиду простоты расположения зондов в оптических микроскопах, сканирующих ближнее поле, можно обеспечить возбуждение ППП в различных точках на металлической поверхности.

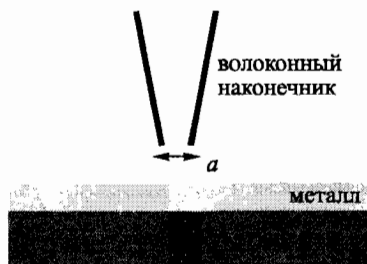


Рис. 3.11. Локальное возбуждение ППП с применением освещения ближнего поля через апертуру размером меньше длины волны

Стандартная схема оптического ближнего поля, подходящая для локального возбуждения ППП, показана на рис. 3.12. ППП, распространяющиеся от точки освещения, можно визуализировать путем улавливания дифракционных потерь в подложку с коэффициентом преломления n , возникающих под углом θ_{spp} . Авторами работы [Necht et al., 1996] данные дифракционные потери были названы запрещенным светом, так как он излучается за пределами светового конуса воздуха, это излучение можно уловить либо с помощью подходящего расположения зеркала, либо при использовании улавливающего объектива с высокой апертурой.

На рис. 3.13 показаны два стандартных изображения распространения ППП вдали от локальной области освещения. Две световые диаграммы, являющиеся результатом точечного освещения, лежат в направлении поляри-

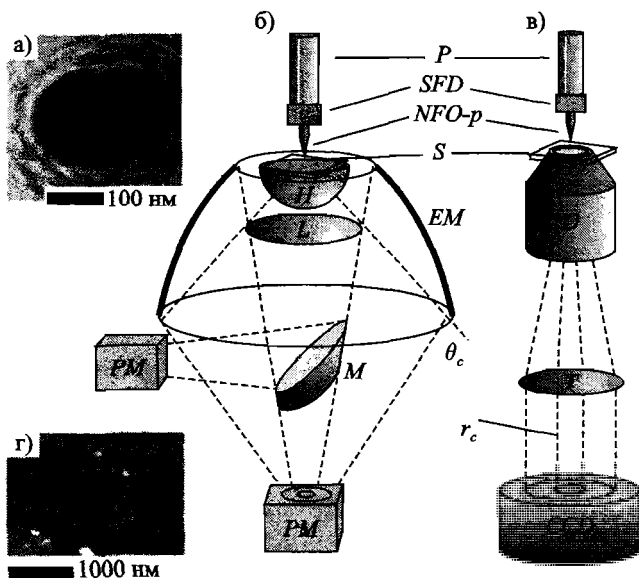


Рис. 3.12. Ближнеполевое оптическое возбуждение ППП. (а) Изображение сканирующей электронной микроскопии апертуры волоконного наконечника в ближнем поле. (б) и (в) Две оптических схемы возбуждения ППП и улавливания света, излучаемого в подложку в дальнем поле. (г) Топография серебряной пленки, используемой в качестве образца (высота выступов 40 нм). Дополнительную информацию по представленным схемам можно получить в работе [Hecht et al., 1996]. © American Physical Society, 1996. Используется с разрешения правообладателя

зации падающего излучения и возбуждения ППП как продольных электромагнитных поверхностных волн для частот, близких к ω_{sp} . Интенсивность ППП можно выразить как

$$I_{SPP} \propto \frac{e^{-\rho/L}}{\rho} \cos^2 \phi, \quad (3.4)$$

где ρ и ϕ полярные координаты, а L — длина локализации ППП. Как и предполагалось, распределение интенсивности по углам сходно излучению двумерного диполя.

При использовании схемы локального возбуждения влияние шероховатости поверхности на распространение ППП и рассеяние на отдельных дефектах поверхности можно исследовать с высокой пространственной разрешающей способностью. Помимо возбуждения ППП, ближнее поле поз-

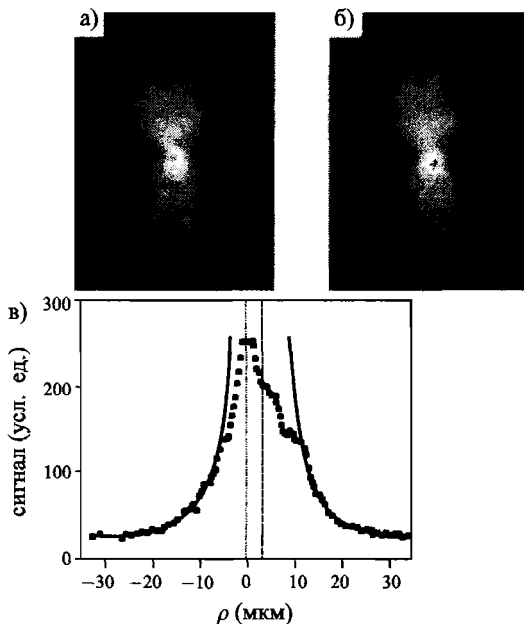


Рис. 3.13. Пространственное распространение интенсивности ППП на серебряной пленке при $\lambda = 630$ нм (а), (б) — изображение $50 \text{ мкм} \times 70 \text{ мкм}$, полученные в дальнем поле, соответствующие различным локализациям возбуждающего ближнеполевого зонда. (в) Поперечное сечение через профиль интенсивности вдоль главных осей симметрии и аппроксимация с помощью формулы (3.4) [Hecht et al., 1996]. © American Physical Society, 1996. Используется с разрешения правообладателя

воляет добиться возбуждения и проведения спектрального анализа мод локализованных поверхностных плазмонов в отдельных металлических наноструктурах, что будет обсуждаться в главе 10.

3.6. Схемы связи, подходящие для объединения с традиционными фотонными элементами

Схемы оптического возбуждения, рассмотренные выше, подходят для исследования распространения ППП и плазмонных структур, экспериментальное изучение характеристик и практическое применение ППП в фотонных интегрированных схемах требует высокоэффективных (и в идеале широкополосных) схем связи. Предпочтительно, чтобы плазмонные компо-

ненты эффективно согласовывались с традиционными диэлектрическими оптическими волноводами и оптоволокном, при такой возможности можно будет использовать эти устройства для передачи энергии к плазмонным волноводам и резонаторам. Последнее, в свою очередь, может обеспечить высокую степень локализации поля [Maier et al., 2001], например, для направленного излучения к одиночным молекулам.

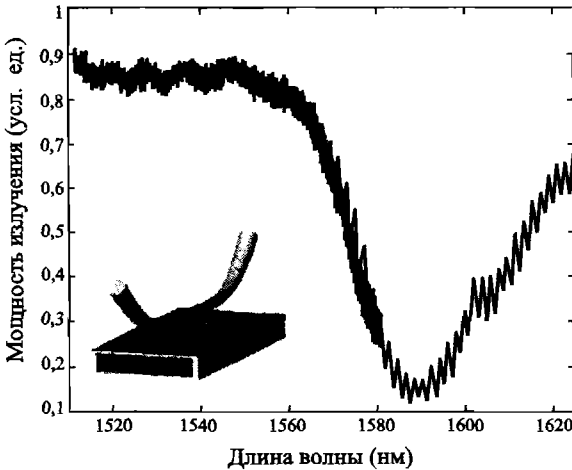


Рис. 3.14. Возбуждение ППП в волноводе из наночастиц металла, расположенных на тонкой кремниевой мембране, попадающих в волоконный наконечник (эскиз во вкладке). Спектр пропускания показывает мощность, проходящую через конус за область связи, и демонстрирует коэффициент передачи по мощности 75 % при $\lambda_0 = 1590$ нм при фазовом синхронизме [Maier et al., 2005]. © American Institute of Physics, 2005. Используется с разрешения правообладателя

Одна из схем реализует связь в продольном направлении, в которой луч света из свободного пространства фокусируется на входе в волновод. В данной схеме используется не фазовый синхронизм, а работает согласование пространственного распределения поля волновода и регулируемая ширина входного луча. Для ППП, распространяющихся по границе раздела, Стегеман с коллегами продемонстрировали, что при использовании данного метода эффективность связи может достигать до 90 % [Stegeman et al., 1983]. В отличие от призмного ввода, данный способ позволяет добиться возбуждения связанных мод, которые не диссипируют в подложку. Связь в продольном направлении особенно эффективна для возбуждения мод ППП, распространяющихся на большие расстояния вдоль тонких металлических

пленок, симметрично встроенных в диэлектрический носитель. Вследствие делокализации (см. главы 2 и 7), согласование пространственных мод наиболее эффективно достигается именно в этом режиме. При этом естественно, для геометрий, которым свойственна локализация поля ниже дифракционного предела, например волноводы металл/диэлектрик/металл с диэлектриком толщиной меньше длины волны, перекрытие между возбуждающим лучом и связанной модой ППП — очень небольшое, что приводит к низкой эффективности возбуждения.

Для ППП с большей степенью удержания предпочтительная схема согласования достигается с использованием оптоволоконных наконечников, подводимых непосредственно к волноводу, что дает возможность передачи фазосогласованной мощности через малую связь [Maier et al., 2004]. На рис. 3.14 представлен пример зависимости спектральной мощности, переданной через область связи между волоконным наконечником и волноводом из металлических наночастиц, изготовленным на верхней поверхности тонкой кремниевой мембраны. Уменьшение мощности на конце волокна при $\lambda = 1590$ нм вызвано передачей мощности плазмонному волноводу, в этом случае с эффективностью связи около 75% [Maier et al., 2005]. Дополнительную информацию о плазмонных волноводах со связью через волоконный наконечник можно найти в главе 7.

ГЛАВА 4

Способы визуализации поверхностного плазмон-поляритона

Продемонстрировав методы визуализации поверхностных плазмон-поляритонов, мы продолжим описание способов получения изображения полей при их распространении вдоль границ раздела. С помощью оптического оборудования призмного ввода или вывода, дифракционной решетки факт возбуждение ППП можно определить из-за уменьшения интенсивности отраженного светового луча (см. главу 3), однако получение прямой визуализации распространения ППП остается в категории желаемых результатов. Длина распространения волны (L) зависит от коэффициента поглощения внутри металла и от дифракционных потерь (при наличии). Изучение внеплоскостного удержания может быть определено по затухающим полям с диэлектрической стороны границы раздела. Мы уже упоминали о взаимосвязи между дальностью распространения и размером области удержания, которая имеет решающее значение при проектировании плазмонных волноводов (глава 7).

В данной главе представлены четыре известных способа получения изображения ППП: оптическая микроскопия ближнего поля, флуоресцентное изображение и изображение, основанное на обнаружении излучения дифракционных потерь, а также сопутствующее наблюдение за рассеянным световым излучением. Среди вышеперечисленных способов только оптическая микроскопия ближнего поля обеспечивает разрешающую способность длины парциальной волны, необходимую для точного определения соотношения потерь/удержания высоколокализованных в пространственном отношении ППП, возбуждаемых вблизи ω_{sp} или в соответствующих многослойных структурах. О катодолюминесцентном изображении речь пойдет в главе 10, посвященной спектроскопии локализованных плазмонов.

4.1. Микроскопия ближнего поля

Эффективным способом изучения распространения ППП на границе раздела тонкой металлической пленки и воздуха с разрешающей способно-

стью парциальной волны является оптическая микроскопия ближнего поля для улавливания мод, также называемая фотонной сканирующей туннельной микроскопией. Последний термин подчеркивает смысловую аналогию со сканирующей туннельной микроскопией (СТМ). В обоих случаях с помощью соответствующего контура обратной связи острый наконечник подводится непосредственно к изучаемой поверхности (рис. 4.1). Тогда как СТМ измеряет силу тока (вызванную подаваемым напряжением), создаваемую туннелированием электронов между поверхностью и атомно-острым металлическим наконечником, фотонная сканирующая туннельная микроскопия (ФСТМ) улавливает фотоны, объединяя рассеянное ближнее поле над поверхностью с распространяющимися модами внутри клиновидного световода. Оптический наконечник для ближнего поля (также называемый зондом) обычно изготавливается путем вытягивания или травления оптоволоконного конуса, наконечник которого, как правило, покрывают металлом, чтобы разорвать связь дифрагированных световых полей. На разрешающую способность данного способа накладывает ограничения размер отверстия наконечника, который может достигать 50 нм или менее при использовании травления (или метода микрообработки). Помимо зондов с металлическим покрытием, также часто используются зонды без покрытия с повышенной эффективностью улавливания, продемонстрировавшие способность получать информацию о других компонентах электромагнитного поля вокруг наноструктур [Degeux et al., 2001].

Для изучения удержания и распространения ППП с использованием данной схемы необходимо подвести наконечник максимально близко к плоской металлической поверхности таким образом, чтобы он попал в экспоненциально убывающее поле ППП, т. е. он должен находиться в пределах расстояния \hat{z} (рассчитанного согласно (2.12)). Для изучения золотых и серебряных пленок в диапазоне частот видимой части спектра между зондом и пленкой необходимо обеспечить зазор 100 или менее нанометров, что легко достигается благодаря использованию методов обратной связи, таких как бесконтактная атомно-силовая микроскопия, обратная связь по усилию сдвига или регулируемая силовая обратная связь, а также за счет использования интенсивности самого улавливаемого светового поля в качестве сигнала обратной связи (подобно СТМ, где для этих целей используется туннельный ток, пропорциональный количеству собранных электронов).

Во избежание взаимодействия со схемой обнаружения, оптическое возбуждение ППП обычно проводится через призмный ввод (рис. 4.1) или сфокусированным лучом с помощью масляно-иммерсионного объектива высокой апертуры снизу подложки. Заметим, схема с призмным вводом не подходит для возбуждения ППП с произвольными коэффициентами рас-

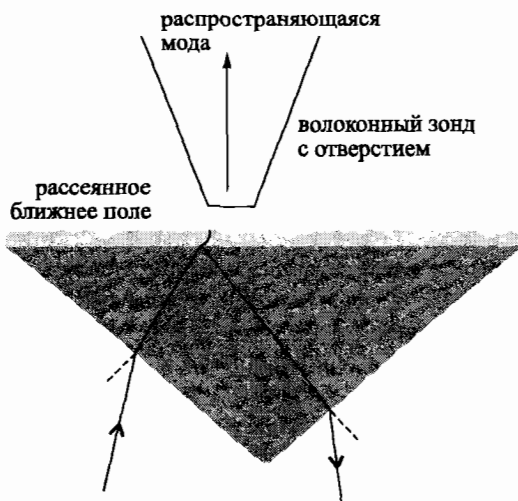


Рис. 4.1. Стандартная схема для получения оптического изображения ближнего поля для ППП на границе раздела металл/воздух. Исчезающие поля, проникающие в воздух, взаимодействуют с распространяющимися модами в конусном оптоволоконном наконечнике. Возбуждение ППП может обеспечиваться за счет призматического ввода (показан на рисунке), сфокусированного луча или потока частиц

пространения β , кроме тех, которые находятся в пределах диапазона мод утечки, как было показано в главе 3.

Первые исследования физических свойств ППП с помощью оптической микроскопии ближнего поля обнаружили удержание моды на границе раздела тонкой серебряной пленки с воздухом. ППП возбуждались в геометрии призматического ввода, а исчезающее поле со стороны воздуха исследовалось с помощью оптоволоконного наконечника с отверстием. Приближение и удаление зонда подтвердило локализацию и соответствующее усиление электромагнитного поля в области ближнего поля вблизи поверхности [Marti et al., 1993]. Отслеживание интенсивности полученного сигнала при различных значениях высоты над поверхностью позволило определить степень проникновения полей ППП в воздух над поверхностью, подтвердив пространственную протяженность экспоненциально затухающего поля [Adam et al., 1993].

Сочетание улавливания ближнего поля и методов растрового сканирования обеспечивает прямую визуализацию распространяющихся ППП. Доусон с коллегами использовали ФСТМ для пространственного изображе-

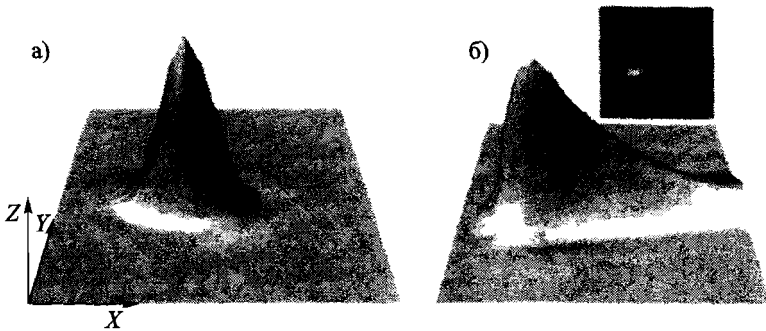


Рис. 4.2. Изображение ближнего поля гелий-неонового лазерного луча ($\lambda = 633$ нм), падающего с внутренней стороны под углом, превышающим критический, на (а) непокрытую грань призмы и (б) на грань призмы, покрытую серебряной пленкой толщиной 53 нм (область сканирования 40×40 мкм). В случае (б) экспоненциально затухающий хвост вызван распространением ППП вдали от области возбуждения [Dawson et al., 1994]. © American Physical Society, 1994. Используется с разрешения правообладателя

ния распространения ППП, возбуждаемых при помощи призмного ввода на тонкую серебряную пленку [Dawson et al., 1994]. На рис. 4.2b показана трехмерная визуализация интенсивности, улавливаемой в ближнем поле над поверхностью пленки. Длина волны возбуждения $\lambda_0 = 633$ нм в видимом режиме обеспечила хорошее удержание до границы раздела ($\hat{z} \approx 420$ нм, рассчитанной по (2.12)). В качестве контрольного эксперимента на рис. 4.2а показано экспоненциально исчезающее поле над поверхностью непокрытой призмы в подобных условиях возбуждения. В случае призмы, покрытой серебром, хорошо прослеживается распространение электромагнитного поля за пределами области возбуждения. Подобные эксперименты позволяют напрямую определить дальность распространения ППП (L) по экспоненциальному затухающему полю, начинающемуся в области появления ППП. В случае ППП серебро/воздух дальность распространения была определена как 13,2 мкм, что хорошо согласуется с теоретическим расчетом. Оптическая микроскопия ближнего поля для улавливания моды, начиная с первых исследований, стала широко применяться для изучения распространения ППП, наиболее часто — для исследования волнового распространения вдоль металлических полос, где размер ППП в поперечнике ограничен шириной полосы (глава 7). Это позволило определить связь между дальностью распространения и поперечным удержанием, также провести дополнительные исследования нового типа функцио-

нальных волноводных устройств, таких как светоотражатели или зеркала Брегга. Изображение ближнего поля позволило реализовать прямую визуализацию взаимодействия между сонаправленными и противоположенными волнами ППП. Некоторые из этих исследований будут представлены в главе 7, посвященной плазмонным волноводам.

Зондирование ближнего поля оказалось полезным для оценки потерь на структурированных металлических поверхностях [Bouhelier et al., 2001], а также для определения дисперсии ППП на криволинейных поверхностях [Passian et al., 2004]. Следует обратить внимание на то, что зондирующий наконечник может влиять на дисперсию волн, но в отношении диэлектрических наконечников этим можно пренебречь [Passian et al., 2005].

Как можно было ожидать, оптическая микроскопия ближнего поля также является предпочтительным методом для изучения локализованных поверхностных плазмонов в металлических наночастицах или совокупностях металлических наночастиц (см. главу 5). Соответствующие примеры будут рассмотрены в главе 10, посвященной спектроскопии и зондированию.

В этой моде волоконный датчик эффективно работает как дипольный источник для возбуждения поверхностных плазмонов (или распространения ППП, как об этом говорилось в предыдущей главе). Информацию об электромагнитной структуре поверхности можно извлечь из пропущенного или отраженного света, собранного с помощью объектива в дальнем поле. Помимо улавливания фотонов в дальнем поле, исследуемую структуру металлической пленки можно закрепить непосредственно на самом фотодиоде, что продемонстрировал Драгнеа с коллегами, использовавший эту геометрию для изучения распространения ППП на плоской металлической пленке [Dragnea et al., 2003].

4.2. Флуоресцентное изображение

Вместо локального улавливания оптического ближнего поля ППП при помощи волоконного наконечника с отверстием по методу оптической микроскопии ближнего поля, источники излучения (например квантовые точки или флуоресцентные молекулы) можно поместить непосредственно в экспоненциально затухающий хвост поля ППП. Если частота распространения ППП находится в пределах полосы спектра источников излучения, их возбуждение посредством ППП станет возможным, и интенсивность испускаемого излучения флуоресценции будет пропорциональна интенсивности локального поля в точке размещения источника излучения. Следовательно, изображение распространения ППП на границе раздела металл/воздух можно получить, покрыв поверхность диэлектрической пленкой, допированной

источниками вторичного излучения. Если слой достаточно тонкий и имеет низкий коэффициент преломления (например квантовые точки, интегрированные в полимер, или монослой флуоресцентных молекул), изменение дисперсии ППП, вызываемое слоем, будет незначительным.

Флуоресцентные молекулы, помещенные в ближнее поле распространения ППП (а также в ближнее поле локализованных плазмонов), могут демонстрировать увеличенный выход флуоресценции при уравнивании безызлучательного подавления, это будет более подробно обсуждаться в главе 9. Последнего можно достичь за счет тонкого разделительного слоя порядка нескольких нанометров между металлической пленкой, сохраняющей ППП, и флуоресцентными молекулами для блокирования передачи безызлучательной энергии.

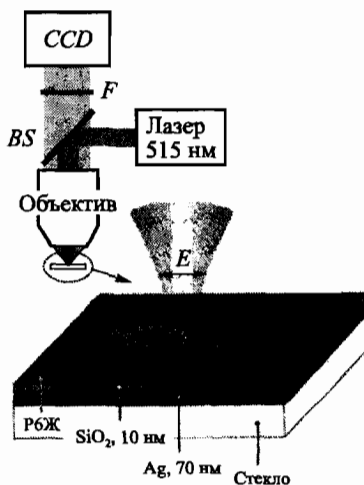


Рис. 4.3. Флуоресцентное изображение полей ППП. ППП на серебряной пленке толщиной 70 нм возбуждаются с помощью 100-кратного объектива. Распределение поля фиксируется через флуоресцентное излучение слоя с Родамином 6Ж [Ditlbacher et al., 2002]. © American Institute of Physics, 2002. Используется с разрешения правообладателя

Дитлбахер с коллегами использовали эту концепцию для изображения ППП, возбуждаемых на тонкой серебряной пленке толщиной 70 нм при фокусировке лазерного луча ($\lambda_0 = 514$ нм, $P = 5$ мВт) на проволоке или на дефектах поверхности наночастиц, созданных с помощью электронно-лучевой литографии (рис. 4.3) [Ditlbacher et al., 2002]. Металлическая плен-

ка была покрыта монослоем молекул Родамина 6Ж, чтобы можно было определить пространственную структуру полей ППП. В целях уменьшения подавления вследствие межмолекулярного взаимодействия и безызлучательных переходов в металлическую пленку была выбрана достаточно низкая концентрация молекул и установлен разделительный слой (SiO_2 , толщиной 10 нм) между молекулярной пленкой и серебряной подложкой. ПЗС изображает флуоресцентный сигнал, улавливаемый через дихроическое зеркало, как показано на рис. 4.4. Интенсивность распространения хорошо коррелирует с предполагаемыми каналами распространения ППП, возбуждаемых посредством поверхностных дефектов (сравните с [Hecht et al., 1996] и рис. 3.13 в главе 3).

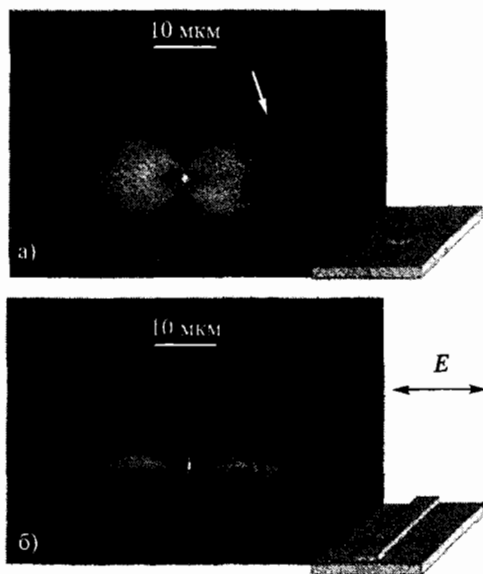


Рис. 4.4. Флуоресцентные изображения распределения интенсивности ППП, возбуждаемых излучением (а) наночастиц серебра (диаметром 200 нм, высотой 60 нм) и (б) серебряным нанопроводом (шириной 200 нм, высотой 60 нм, длиной 20 мкм). Данные частицы расположены на серебряной пленке, в которой возбуждаются ППП [Ditlbacher et al., 2002]. © American Institute of Physics, 2002. Используется с разрешения правообладателя

С помощью данной схемы можно получить информацию о пространственном удержании в поперечном направлении, дальности распространения

ния и эффекте интерференции по аналогии с прямым зондированием ближнего поля при помощи зонда с отверстием, хотя разрешающая способность в лучшем случае будет соответствовать дифракционному пределу. При этом для количественного анализа следует обратить особое внимание на эффект осветления в областях высокой интенсивности поля.

4.3. Излучение дифракционных потерь

Дисперсионная кривая ППП, возбуждаемых на границе раздела металлической пленки и воздуха, лежит за пределами конуса распространения света, определяемого по формуле $k = n_{air}\omega/c$, и мода не теряет излучение в области воздуха (для идеально плоской границы раздела шероховатостью можно пренебречь). При этом энергия может уйти во вспомогательную подложку с более высоким коэффициентом n_s . Эти потери на излучение возникают во всех точках дисперсионной кривой, которые лежат слева от линии света подложки $k = n_s\omega/c$, как показано на рис. 4.5. Следовательно, для ППП, возбуждаемых в области коэффициента распространения β , рассчитываются по формуле

$$k_0 < \beta < k_0 n_s, \quad (4.1)$$

излучение дифракционных потерь в подложку обеспечивает второй канал потерь в дополнение к внутренним потерям на поглощение.

В предыдущей главе мы увидели, что «просачивающиеся» ППП, по сути, возбуждаются с помощью призмного ввода, и что излучение дифракционных потерь в призме взаимодействует с прямо отраженным лучом. Как уже упоминалось, отражение по нормали достигается только при условии критической связи (см. (3.1)), когда потери на поглощение равны радиационным потерям, и вся мощность поглощается металлической пленкой, что достигается только для металлических пленок с критической толщиной.

Помимо эффективности призмного ввода, излучение дифракционных потерь можно использовать для изучения ППП, возбуждаемых другими способами, например, с помощью остро сфокусированных лучей или дифракционных решеток, пока вектор волны возбуждения β находится в пределах конуса распространения света подложки, при условии выполнения (4.1).

Стандартная схема улавливания излучения дифракционных потерь показана на рис. 4.6 [Ditlbacher et al., 2003]. В этой работе интенсивность излучения дифракционных потерь использовалась для количественного выражения светоотдачи вывода для ППП методом возбуждения с помощью дифракционной решетки с изменяемым количеством штрихов с периодом

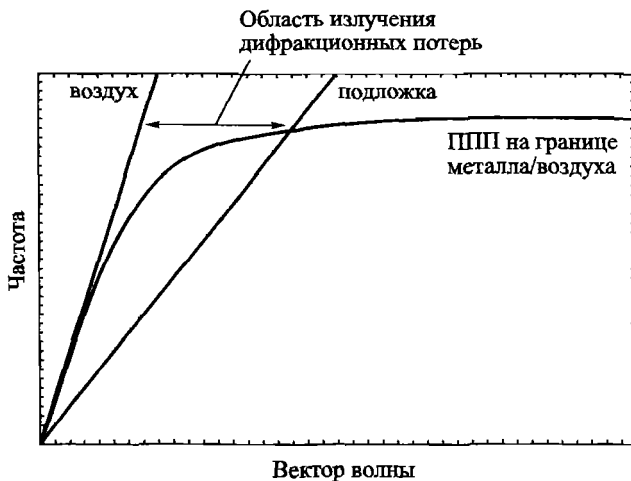


Рис. 4.5. Характерное дисперсионное соотношение ППП на границе раздела металл-воздух. В области, заключенной между дисперсионными линиями света в воздухе и подложке с более высоким коэффициентом, распространение ППП теряет энергию под воздействием излучения дифракционных потерь в конусе распространения света подложки. Эти потери можно уловить для получения изображения

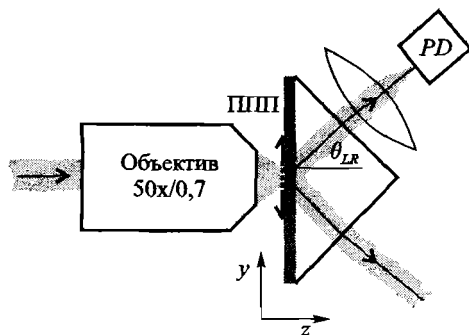


Рис. 4.6. Экспериментальная схема для изображения излучения дифракционных потерь полей ППП. В данном случае возбуждение ППП достигается с помощью решеточного ввода, а также обеспечивается улавливание излучения дифракционных потерь в расположенную ниже призму с помощью фотодиода [Ditlbacher et al., 2003]. © American Institute of Physics, 2003. Используется с разрешения правообладателя

решетки А. Было замечено, что при такой геометрии только половина выходящего излучения дифракционных потерь улавливается через расположенную снизу призму. С помощью данного метода трехмерные профили распределения интенсивности можно получить за счет изменения положения образца относительно возбуждающего лазерного луча. Количество излучения дифракционных потерь, собранного для пленок с одним (а) и тремя штрихами на выводе с различными периодами решетки (б–г) показано на рис. 4.7. Максимальная эффективность вывода ППП, равная 15 %, была получена для образца с тремя штрихами и соответствующим периодом решетки. Естественно, такая же схема может использоваться для получения количественного выражения эффективности вывода других способов, таких как остро сфокусированных лучей или вывода через естественную или искусственно сгенерированную шероховатость поверхности (глава 3).

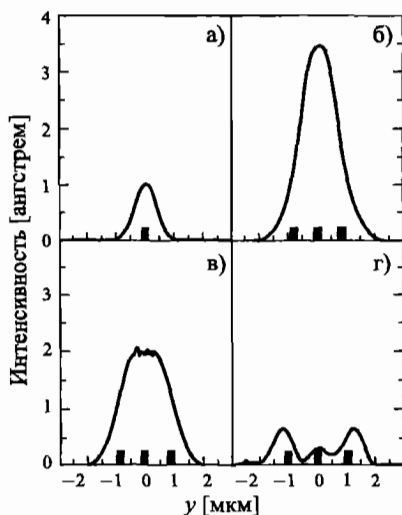


Рис. 4.7. Количественное выражение эффективности вывода ограниченной металлической решетки, полученное путем улавливания излучения дифракционных потерь. На графиках представлено наблюдаемое в ходе эксперимента распределение излучения дифракционных потерь в зависимости от положения образца (рис. 4.6) для образца с одним штрихом (а) и образцов с тремя штрихами, имеющими различные периоды решетки (в–г). Максимальный профиль распределения интенсивности в случае (а) был нормализован до 1 [Ditlbacher et al., 2003]. © American Institute of Physics, 2003. Используется с разрешения правообладателя

Излучение дифракционных потерь также должно учитываться при проектировании плазмонных волноводов. Например, все исследования распространения удерживаемых в горизонтальной плоскости ППП в металлических полосках или нанопроволоках, где неотъемлемо применялось возбуждение призмного вывода, изучают только моды в области утечки (4.1), описанной выше. Такие щелевые волноводы будут подробно рассматриваться в главе 7.

Помимо наблюдения за распространением ППП, изображение излучения дифракционных потерь также можно использовать для прямой визуализации дисперсионного соотношения ППП, продемонстрированного Гианнатасио и Барнесом [Giannattasio and Barnes, 2005]. В этой работе ППП на границе раздела воздуха и серебряной пленки толщиной 50 нм возбуждались с помощью сфокусированного светового луча с использованием дисперсии от шероховатости поверхности, выбранной в случайном порядке, для совпадения по фазе (рис. 4.8). Излучение дифракционных потерь в кремниевую подложку отображалось напрямую через камеру ПЗС, приклеенную снизу подложки. Для плоской пленки (рис. 4.8а) излучение испускалось в пределах конуса угла поверхностного плазмона θ_{SPP} , рассчитанного по $n_s k_0 \sin \theta_{\text{SPP}}$, который пересекается с плоскостью ПЗС, образуя сечение в форме окружности. Для возбуждения можно использовать свет различных частот, а результирующий вектор волны β в области (4.1) определяется путем вычисления угла θ_{SPP} излучения дифракционных потерь из радиуса изображенной окружности. На рис. 4.9а показано изображение частей окружности конуса, полученного за счет улавливания излучения дифракционных потерь, подтверждая пользу данного способа для определения дисперсионного соотношения ППП.

Данная схема предоставляет удобный способ для определения более сложных дисперсионных соотношений структурированных металлических поверхностей. Для поверхности с равномерным одномерным рифлением и периодом решетки a (соответствующим эквивалентному вектору решетки $\mathbf{G} = 2\pi/a$) падение возбуждающего лазерного излучения по нормали приводит к излучению дифракционных потерь в центральный конус света (соответствующий рассеянию нулевого порядка), пересекаемый другими конусами, образующимися вследствие рассеяния распространения ППП с векторами волн $\mathbf{k} \pm \mathbf{G}$ (рис. 4.8б). Это приводит к образованию запрещенных энергетических зон для распространения ППП на пересечениях смежных конусов, что четко просматривается на рис. 4.9б в виде разрывов центральной окружности. Кроме того, траектории рассеяния в слоях как воздуха, так и подложки просматриваются на этих изображениях в виде прямых струеобразных линий.

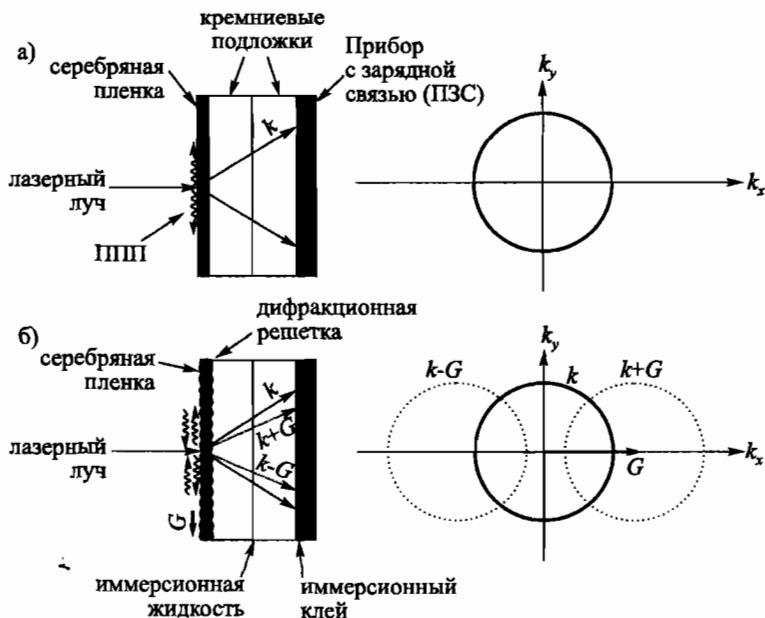


Рис. 4.8. Экспериментальная геометрия изображения излучения дифракционных потерь для определения дисперсионного соотношения ППП. (а) Плоская посеребренная поверхность: на кремниевую подложку испускается один конус света. (б) Рельефная посеребренная поверхность: теперь центральный конус пересекается с другими конусами света из-за рассеяния ППП посредством дифракционной решетки с вектором Брегга G [Giannattasio and Barnes, 2005]. © Optical Society of America, 2005. Используется с разрешения правообладателя

4.4. Изображение рассеянного светового излучения

Распространение ППП на границе раздела металлической пленки с воздухом можно легко восстановить с помощью улавливания света, потерянного на излучение вследствие рассеяния на случайных (или намеренно созданных) неровностях поверхности. Рассеяние на таких неровностях позволяет ППП с волновым вектором $\beta > k_0$ приобретать компоненту импульса Δk_x , которая может уменьшить β до величины, лежащей в области конуса распространения света воздуха (см. уравнение (3.3)), приводя к согласованию с непрерывным излучением и, таким образом, излучению фотонов. Для большинства плоских пленок с хорошим качеством поверхности

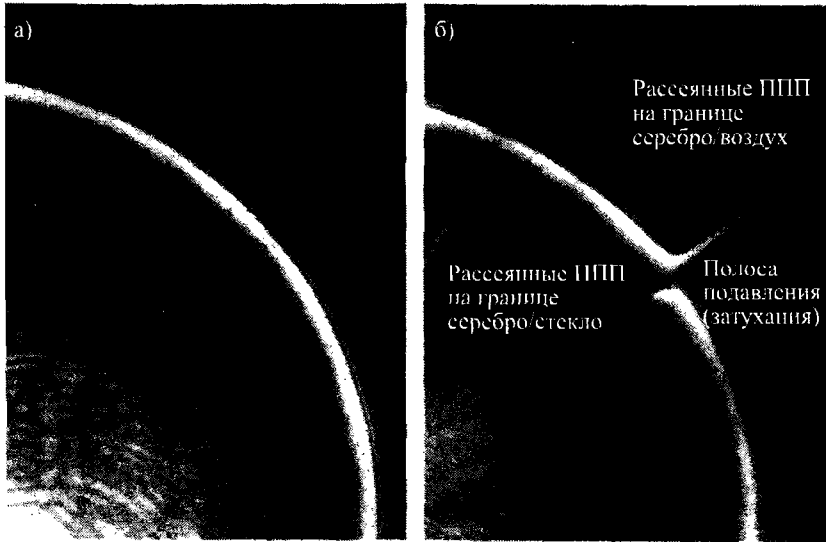


Рис. 4.9. Прямое изображение конусообразного излучения в k -пространстве, изображенном на рис. 4.8, записанное с помощью матрицы ПЗС. (а) Плоский образец. (б) Изображение полосы подавления, возникающей на пересечении двух конусов в k -пространстве [Giannattasio and Barnes, 2005]. © Optical Society of America, 2005. Используется с разрешения правообладателя

величина рассеяния уменьшается, затрудняя точное определение свойств ППП, например длину распространения.

Наблюдение рассеяния света случайными неровностями также можно использовать для получения дисперсионного соотношения ППП на модулированных поверхностях. Дефине и Ледесма использовали этот способ для определения запрещенных энергетических зон ППП на металлических поверхностях, имеющих дифракционную решетку, наблюдая за так называемыми полосами диффузного света [Depine and Ledesma, 2004]. Экспериментальная схема достаточно проста и показана на рис. 4.10. ППП возбуждается за счет фокусировки лазерного луча под углом θ к поверхности, рассеянный свет проецируется на экран, параллельный подложке.

Было показано, что использование концентрирующей дифракционной решетки приводит к преобразованию поляризации отраженных световых лучей из-за взаимодействия с ППП, даже если β полностью параллельна

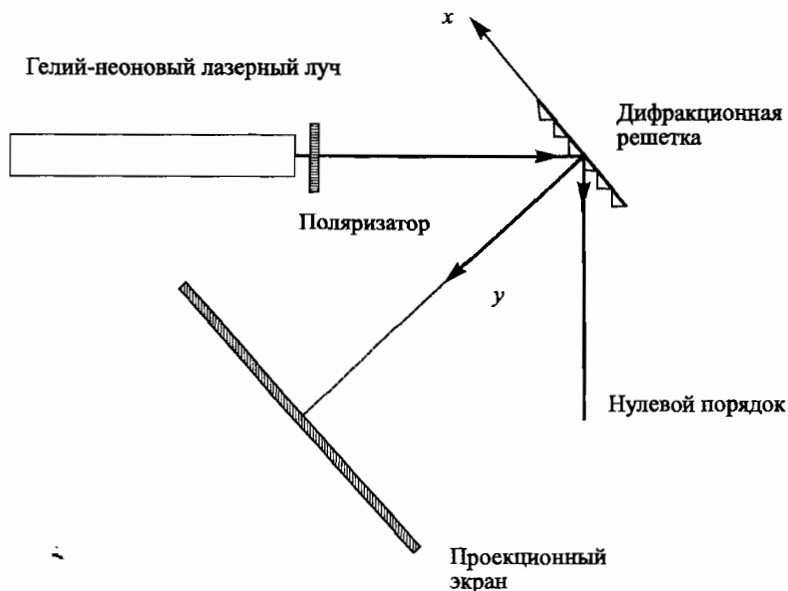


Рис. 4.10. Экспериментальная схема для наблюдения фона диффузного рассеяния [Derile and Ledesma, 2004]. © Optical Society of America, 2004. Используется с разрешения правообладателя

штрихам дифракционной решетки [Watts and Sambles, 1997]. Схема обратного пространства (т. е. двумерный график компонент β , находящихся в одной плоскости) получена с помощью записи интенсивности зеркального отражения в зависимости от угла падения световых лучей θ и угла ϕ между β и вектором Брегга дифракционной решетки.

Дефине и Ледесма показали, что наблюдение за диффузным фоном не требует такого углового сканирования ϕ , которое обеспечивается благодаря рассеянию на собственной шероховатости поверхности.

Полученные карты интенсивности компонент β , находящихся в одной плоскости, показаны на рис. 4.11 для света, падающего как при условиях (а) ТМ-, так и (б) ТЕ-поляризации. Наблюдаемая структура хорошо соответствует расчету электромагнитных мод, поддерживаемых данной системой, а также экспериментальному определению с помощью углового сканирования [Watts and Sambles, 1997]. На этих рисунках запрещенную энергетическую зону можно определить путем снятия показаний минимального расстояния между темными гранями запрещенных β .

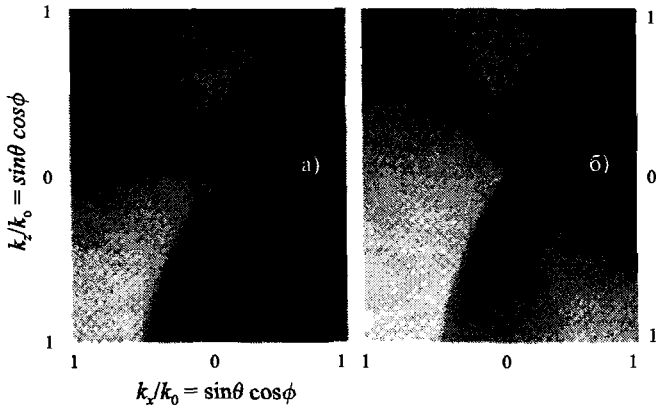


Рис. 4.11. Карта обратного пространства ППП, возбуждаемых при помощи концентрирующей дифракционной решетки для (а) ТМ- и (б) ТЕ-лучей поляризованного возбуждения. Подробную информацию см. в тексте [Derive and Ledesma, 2004].
 © Optical Society of America, 2004. Используется с разрешения правообладателя

ГЛАВА 5

Локализованные поверхностные плазмоны

В этой главе мы рассмотрим еще одно фундаментальное понятие плазмоники — локализованные поверхностные плазмоны. В предыдущих главах мы показали, что ППП распространяются по границе раздела проводник–диэлектрик и представляют собой электромагнитную волну и связанное с ней коллективное возбуждение электронной плазмы. Локализованный поверхностный плазмон представляет собой электромагнитное поле и связанное с ним коллективное возбуждение электронов проводимости в металлических наноструктурах. Ниже будет показано, природа этих электромагнитных полей связана с проблемой рассеяния электромагнитного поля на проводящих наночастицах с размерами меньше длины волны. Кривизна поверхности наночастицы изменяет действующую на электроны эффективную силу, приводя к усилению поля как внутри, так и вне частицы. Обсуждаемая ситуация определяет *локализованный поверхностный плазмонный резонанс*, или *локализованный плазмонный резонанс*. Еще одним следствием криволинейной поверхности наночастицы является возбуждение плазмонных резонансов под действием света, что отличает их от ППП, для возбуждения которых применяется метод фазового синхронизма, как упоминалось в главе 3.

Мы рассмотрим физику локализованных поверхностных плазмонов с учетом взаимодействия металлических наночастиц с электромагнитной волной, чтобы понять условие резонанса. В последующих разделах речь пойдет о процессах поглощения, исследованиях плазмонных резонансов в частицах различных форм и геометрических размеров, а также об эффектах взаимодействия между ансамблями частиц. Кроме частиц, интересными наноструктурами, в которых можно возбудить локализованные плазмоны, являются диэлектрические включения в металлических телах и нанооболочки. В заключение данной главы приведен краткий обзор взаимодействия металлических частиц с электромагнитными полями в усиливающей среде.

В случае наночастиц золота и серебра резонанс находится в видимой области электромагнитного спектра. Поразительным результатом этого являются яркие цвета частиц как в проходящем, так и в отраженном свете, являющиеся следствием резонансно усиленного поглощения и рассеяния. Этот эффект использовался на протяжении многих столетий, например, при изготовлении стекол для окон и декорирования кубков. В главах 9 и 10 будут рассмотрены способы применения локализованных плазмонных резонансов для усиления излучения и оптического считывания.

5.1. Нормальные моды электромагнитного поля в металлических частицах

Взаимодействие частицы размером d с электромагнитным полем может быть проанализировано в приближении *квазистатической аппроксимации* при условии, что $d \ll \lambda$, т.е. размер частицы значительно меньше длины волны света в окружающей частицу среде. В этом случае фаза гармонически осциллирующего электромагнитного поля в объеме частицы может считаться постоянной, и пространственное распределение поля может быть найдено из упрощенной задачи для частицы в однородном поле. После решения задачи о пространственном распределении амплитуд поля будем предполагать временные фазы гармоник одинаковыми для любых точек внутри частицы. Как будет показано ниже, такая аппроксимация достаточно точно описывает оптические свойства наночастиц в большинстве случаев до размеров порядка 100 нм.

Мы начнем с наиболее удобной для аналитического исследования геометрии: однородный и изотропный диэлектрический шар радиуса a , расположенный в начале координат находится в однородном электрическом поле с напряженностью $\mathbf{E} = E_0 \hat{z}$ (рис. 5.1). Будем считать окружающую среду изотропной и непоглощающей с диэлектрической проницаемостью ϵ_m и на достаточно большом расстоянии от шара силовые линии электрического поля параллельными направлению оси Oz . В дальнейшем ограничимся временной дисперсией диэлектрической проницаемости $\epsilon(\omega)$, которую будем считать комплексным числом ϵ .

В случае электростатики нас интересует решение уравнения Лапласа для потенциала $\nabla^2 \Phi = 0$, с помощью которого мы можем рассчитать напряженность электрического поля $\mathbf{E} = -\nabla \Phi$. Цилиндрическая симметрия задачи позволяет нам искать общее решение в виде [Jackson, 1999]

$$\Phi(r, \theta) = \sum_{l=0}^{\infty} \left[A_l r^l + B_l r^{-(l+1)} \right] P_l(\cos \theta), \quad (5.1)$$

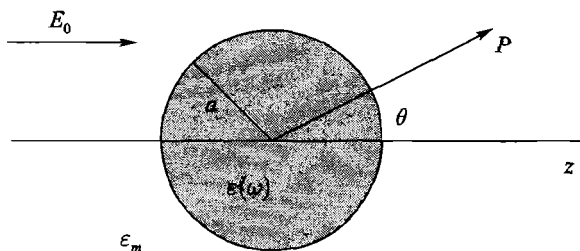


Рис. 5.1. Диэлектрический шар, помещенный в однородное электростатическое поле

где $P_l(\cos \theta)$ являются полиномами Лежандра порядка l , а θ — угол между радиус-вектором r произвольной точки P и осью z (рис. 5.1). С учетом следующего очевидного физического условия — потенциал в начале координат не обращается в бесконечность, решение для потенциалов Φ_{in} внутри и Φ_{out} вне шара можно записать как

$$\Phi_{\text{in}}(r, \theta) = \sum_{l=0}^{\infty} A_l r^l P_l(\cos \theta), \quad (5.2a)$$

$$\Phi_{\text{out}}(r, \theta) = \sum_{l=0}^{\infty} [B_l r^l + C_l r^{-(l+1)}] P_l(\cos \theta). \quad (5.2b)$$

Неизвестные коэффициенты A_l , B_l и C_l должны быть определены из двух граничных условий: при $r \rightarrow \infty$ и на поверхности сферы $r = a$. Условие, что $\Phi_{\text{out}} \rightarrow -E_0 z = -E_0 r \cos \theta$ для $r \rightarrow \infty$, требует, чтобы $B_1 = -E_0$ и $B_l = 0$ для $l \neq 1$. Оставшиеся коэффициенты A_l и C_l определяются из граничных условий при $r = a$: непрерывность касательной составляющей электрического поля на поверхности шара

$$-\frac{1}{a} \frac{\partial \Phi_{\text{in}}}{\partial \theta} \Big|_{r=a} = -\frac{1}{a} \frac{\partial \Phi_{\text{out}}}{\partial \theta} \Big|_{r=a} \quad (5.3)$$

и непрерывность нормальной составляющей электрической индукции

$$-\varepsilon_0 \varepsilon \frac{\partial \Phi_{\text{in}}}{\partial r} \Big|_{r=a} = -\varepsilon_0 \varepsilon_m \frac{\partial \Phi_{\text{out}}}{\partial r} \Big|_{r=a}. \quad (5.4)$$

Использование перечисленных граничных условий приводит к тому, что $A_l = C_l = 0$ для $l \neq 1$, в результате решение для потенциала может

быть представлено в виде [Jackson, 1999]

$$\Phi_{\text{in}} = -\frac{3\varepsilon_m}{\varepsilon + 2\varepsilon_m} E_0 r \cos \theta, \quad (5.5a)$$

$$\Phi_{\text{out}} = -E_0 r \cos \theta + \frac{\varepsilon - \varepsilon_m}{\varepsilon + 2\varepsilon_m} E_0 a^3 \frac{\cos \theta}{r^2}. \quad (5.5b)$$

Интересно интерпретировать формулу (5.5b) из физических соображений: Φ_{out} представляет собой суперпозицию потенциалов внешнего поля и поля диполя, помещенного в центр шара. Обозначив момент диполя за \mathbf{p} , мы можем представить Φ_{out} как

$$\Phi_{\text{out}} = -E_0 r \cos \theta + \frac{\mathbf{p} \cdot \mathbf{r}}{4\pi\varepsilon_0\varepsilon_m r^3}, \quad (5.6a)$$

$$\mathbf{p} = 4\pi\varepsilon_0\varepsilon_m a^3 \frac{\varepsilon - \varepsilon_m}{\varepsilon + 2\varepsilon_m} \mathbf{E}_0. \quad (5.6b)$$

Таким образом, мы видим, что внешнее поле поляризует шар, наводя дипольный момент, пропорциональный $|\mathbf{E}_0|$. Если ввести поляризуемость α , определяемую как $\mathbf{p} = \varepsilon_0\varepsilon_m\alpha\mathbf{E}_0$, то

$$\alpha = 4\pi a^3 \frac{\varepsilon - \varepsilon_m}{\varepsilon + 2\varepsilon_m}. \quad (5.7)$$

Формула (5.7) является важным результатом данного раздела, определяющим (вообще говоря, комплексную) поляризуемость шара с диаметром меньше длины волны в приближении электростатики. Отметим, что наш подход приводит к известной формуле Клазиуса–Моссогги [Jackson, 1999].

На рис. 5.2 показаны модуль и фаза комплексной поляризуемости α с учетом частоты ω (в энергетических единицах) для диэлектрической проницаемости $\varepsilon(\omega)$, взятой в приближении Друде (1.20), на рисунке она подогнана под данные для серебра [Johnson and Christy, 1972]. Очевидно, что поляризуемость испытывает резонансное усиление при условии минимальности $|\varepsilon + 2\varepsilon_m|$, что для случая малой $\text{Im}[\varepsilon]$ упрощается до

$$\text{Re}[\varepsilon(\omega)] = -2\varepsilon_m. \quad (5.8)$$

Данное соотношение определяет условия Фрелиха и сопряженную моду (в осциллирующем поле) *дипольного поверхностного плазмона* проводящей наночастицы. Для шара из металла с диэлектрической функцией Друде (1.20), находящейся в воздухе, условие Фрелиха выполняется при частоте $\omega_0 = \omega_p/\sqrt{3}$. Уравнение (5.8) выражает зависимость резонансной

частоты от диэлектрических свойств среды: резонанс смещается в красную область спектра, т. к. ε_m увеличивается. Таким образом, наночастицы металла являются идеальными объектами для оптического считывания изменений коэффициента преломления, которое будет рассмотрено в главе 10.

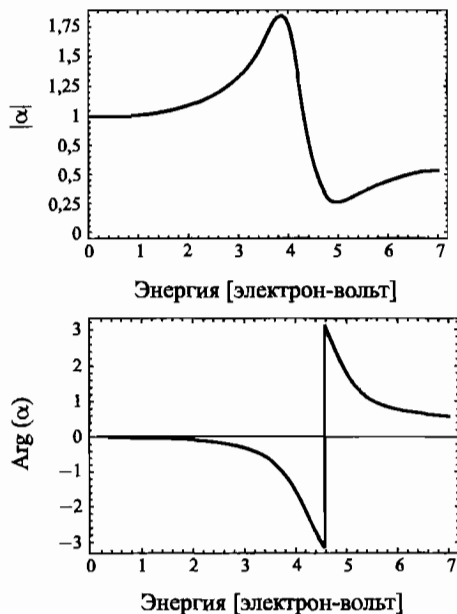


Рис. 5.2. Модуль и фаза поляризуемости α (5.7) наночастиц металла размерами меньше длины волны с учетом частоты поля (выраженной в единицах эВ). Здесь $\varepsilon(\omega)$ по формуле Друде подогнано к диэлектрической проницаемости серебра [Johnson and Christy, 1972]

Заметим, в состоянии резонанса α не обращается в бесконечность, поскольку $\text{Im}[\varepsilon(\omega)] \neq 0$. Эта ситуация будет подробно рассмотрена в последнем разделе главы на примере наночастицы в усиливающей среде.

Напряженность электрического поля $\mathbf{E} = -\nabla\Phi$ можно найти из формул для электрического потенциала (5.5):

$$\mathbf{E}_{\text{in}} = \frac{3\varepsilon_m}{\varepsilon + 2\varepsilon_m} \mathbf{E}_0, \quad (5.9a)$$

$$\mathbf{E}_{\text{out}} = \mathbf{E}_0 + \frac{3\mathbf{n}(\mathbf{n} \cdot \mathbf{p}) - \mathbf{p}}{4\pi\varepsilon_0\varepsilon_m} \frac{1}{r^3}. \quad (5.9b)$$

Как и предполагалось, резонанс поляризуемости α приводит к усилению поля как внутри частицы, так и во внешней среде. Именно подобное усиление поля при плазмонном резонансе используется в большинстве известных способов применения металлических наночастиц в оптических устройствах и датчиках.

До сих пор мы использовали приближение электростатики, с помощью которого рассчитали электромагнитные поля, излучаемые малыми частицами при плазмонном резонансе. В случае шара малого радиуса с $a \ll \lambda$ представление о шаре как идеальном диполе выполняется в квазистатическом режиме, т. е. учитываются меняющиеся во времени поля, но не учитываются пространственные эффекты временной задержки поля в объеме частицы. При возбуждении волной с напряженностью электрического поля $\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = \mathbf{E}_0 e^{-i\omega t}$ создается осциллирующий дипольный момент $\mathbf{p}(t) = \varepsilon_0 \varepsilon_m \alpha \mathbf{E}_0 e^{-i\omega t}$ с поляризуемостью α , определяемой по формуле (5.7). Излучение наведенного диполя приводит к *рассеянию* волны и может быть представлено как излучение точечного диполя.

Напомним основные формулы для расчета электромагнитного поля осциллирующего электрического диполя. Результирующие поля $\mathbf{H}(t) = \mathbf{H} e^{-i\omega t}$ и $\mathbf{E}(t) = \mathbf{E} e^{-i\omega t}$ в ближней, промежуточной и волновой зонах излучения диполя могут быть представлены в следующем виде [Jackson, 1999]:

$$\mathbf{H} = \frac{ck^2}{4\pi} (\mathbf{n} \times \mathbf{p}) \frac{e^{ikr}}{r} \left(1 - \frac{1}{ikr} \right), \quad (5.10a)$$

$$\mathbf{E} = \frac{1}{4\pi\varepsilon_0\varepsilon_m} \left\{ k^2 (\mathbf{n} \times \mathbf{p}) \times \mathbf{n} \frac{e^{ikr}}{r} + [3\mathbf{n}(\mathbf{n} \cdot \mathbf{p}) - \mathbf{p}] \left(\frac{1}{r^3} - \frac{ik}{r^2} \right) e^{ikr} \right\}, \quad (5.10b)$$

где $k = 2\pi/\lambda$, а \mathbf{n} — единичный вектор в направлении интересующей точки P . В ближней зоне ($kr \ll 1$) формула для напряженности электрического поля совпадает с (5.9b):

$$\mathbf{E} = \frac{3\mathbf{n}(\mathbf{n} \cdot \mathbf{p}) - \mathbf{p}}{4\pi\varepsilon_0\varepsilon_m} \frac{1}{r^3}, \quad (5.11a)$$

и, соответственно, напряженность магнитного поля

$$\mathbf{H} = \frac{i\omega}{4\pi} (\mathbf{n} \times \mathbf{p}) \frac{1}{r^2}. \quad (5.11b)$$

Легко видеть, что в ближней зоне относительно велика электрическая составляющая поля, магнитное поле меньше электрического поля на множи-

тель $\sqrt{\varepsilon_0/\mu_0}(kr)$. В случае статических полей ($kr \rightarrow 0$) магнитное поле обращается в ноль.

В волновой зоне излучения при $kr \gg 1$ напряженности полей определяют сферически расходящуюся волну:

$$\mathbf{H} = \frac{ck^2}{4\pi} (\mathbf{n} \times \mathbf{p}) \frac{e^{ikr}}{r}, \quad (5.12a)$$

$$\mathbf{E} = \sqrt{\frac{\mu_0}{\varepsilon_0\varepsilon_m}} (\mathbf{H} \times \mathbf{n}). \quad (5.12b)$$

Для получения более подробной информации отошлем читателя к учебным пособиям по электромагнетизму, например [Jackson, 1999]. С точки зрения оптики существенно более интересным является наблюдение еще одного следствия резонансной поляризуемости α — усиление рассеяния и поглощения света. Соответствующие сечения рассеяния и поглощения, C_{sca} и C_{abs} , можно рассчитать с помощью вектора Пойнтинга с учетом формулы (5.10) [Bohren and Huffman, 1983]:

$$C_{\text{sca}} = \frac{k^4}{6\pi} |\alpha|^2 = \frac{8\pi}{3} k^4 a^6 \left| \frac{\varepsilon - \varepsilon_m}{\varepsilon + 2\varepsilon_m} \right|^2, \quad (5.13a)$$

$$C_{\text{abs}} = k \operatorname{Im}[\alpha] = 4\pi k a^3 \operatorname{Im} \left[\frac{\varepsilon - \varepsilon_m}{\varepsilon + 2\varepsilon_m} \right]. \quad (5.13b)$$

Для малых частиц с $\alpha \ll \lambda$ эффективное поглощение, пропорциональное a^3 , преобладает над эффективным рассеянием, которое пропорционально a^6 . Напомним, что мы не делали предположений в наших расчетах относительно того, является ли сфера металлической. Таким образом, выражения для сечений (5.13) также справедливы для диэлектрических рассеивателей и представляют крайне важную задачу для практического использования. Ввиду быстрого роста функции $C_{\text{sca}} \propto a^6$ трудно выделить вклад мелких частиц на фоне более крупных частиц. Таким образом, изображение наночастиц с размерами менее 40 нм, погруженных в фон более крупных рассеивателей, можно получить только при использовании фотометрии, основанной на медленном масштабировании размера поперечного сечения поглощения [Boyer et al., 2002], о чем более конкретно речь пойдет в главе 10. Соотношения (5.13) также показывают, что для металлических наночастиц как поглощение, так и рассеяние (экстинкция) резонансно усиливаются при плазмонном резонансе дипольной частицы, т.е. при выполнении условия Фрелиха (5.8) [Kreibig and Vollmer, 1995]. Для шара объемом V с диэлектрической проницаемостью $\varepsilon = \varepsilon_1 + i\varepsilon_2$ в квазистатическом пределе аналитическое выражение для поперечного сечения

экстинкции $C_{\text{ext}} = C_{\text{abs}} + C_{\text{sca}}$ имеет следующий вид:

$$C_{\text{ext}} = 9 \frac{\omega}{c} \varepsilon_m^{3/2} V \frac{\varepsilon_2}{[\varepsilon_1 + 2\varepsilon_m]^2 + \varepsilon_2^2}. \quad (5.14)$$

На рис. 5.3 показано поперечное сечение экстинкции серебряного шара в квазистатической аппроксимации, рассчитанной с использованием формулы (5.14) для двух сред.

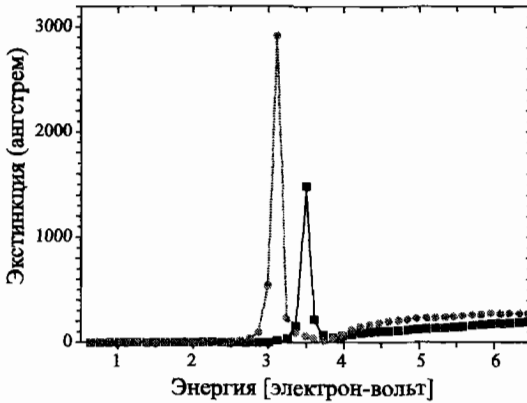


Рис. 5.3. Поперечное сечение экстинкции, рассчитанное по формуле (5.14), для серебряного шара, находящегося в воздухе (черная кривая) и в кремнии (серая кривая), с данными по диэлектрической проницаемости, взятыми из учебника [Johnson and Christy, 1972]

Рассмотрим более общую ситуацию относительно формы наночастицы. Необходимо отметить, физические основы поверхностного плазмонного резонанса металлических наночастиц с размерами меньше длины волны хорошо известны лишь для отдельных случаев. Более общая геометрия, для которой известно аналитическое решение в приближении электростатики, это эллипсоид с полуосями $a_1 \leq a_2 \leq a_3$, уравнение поверхности которого имеет вид $\frac{x^2}{a_1^2} + \frac{y^2}{a_2^2} + \frac{z^2}{a_3^2} = 1$. Решение данной задачи в эллипсоидальных координатах [Bohren и Huffman, 1983] приводит к следующему выражению для поляризуемостей α_i вдоль главных осей ($i = 1, 2, 3$):

$$\alpha_i = 4\pi a_1 a_2 a_3 \frac{\varepsilon(\omega) - \varepsilon_m}{3\varepsilon_m + 3L_i(\varepsilon(\omega) - \varepsilon_m)}, \quad (5.15)$$

L_i является геометрическим коэффициентом, рассчитываемым по формуле

$$L_i = \frac{a_1 a_2 a_3}{2} \int_0^{\infty} \frac{dq}{(a_i^2 + q)f(q)}, \quad (5.16)$$

где $f(q) = \sqrt{(q + a_1^2)(q + a_2^2)(q + a_3^2)}$. Геометрические коэффициенты удовлетворяют $\sum L_i = 1$ для сферы — $L_1 = L_2 = L_3 = \frac{1}{3}$. Можно также ввести коэффициенты деполяризации \tilde{L}_i , определяемые по формуле $E_{1i} = E_{0i} - \tilde{L}_i P_{1i}$, где E_{1i} и P_{1i} являются соответственно электрическим полем и поляризацией частицы во внешнем поле с компонентами E_{0i} вдоль главных осей с номерами i . \tilde{L} связана с L соотношением

$$\tilde{L}_i = \frac{\varepsilon - \varepsilon_m}{\varepsilon - 1} \frac{L_i}{\varepsilon_0 \varepsilon_m}. \quad (5.17)$$

Сфероиды представляют собой особый важный класс эллипсоидов. В случае *вытянутого* сфероида две его малые оси равны друг другу ($a_2 = a_3$), тогда как в случае *сплюсненного* сфероида две его большие оси равны друг другу ($a_1 = a_2$). Из формулы (5.15) следует, что у сфероидальных наночастиц металла имеются два спектрально разделенных плазмонных резонанса, которые соответствуют колебаниям электронов проводимости вдоль большой и малой осей соответственно. Резонанс вследствие колебаний вдоль большой оси может быть значительно смещен в сторону красной области спектра по сравнению с плазмонным резонансом для сферы того же объема. Таким образом, плазмонные резонансы могут быть смещены до частот инфракрасной области спектра с помощью металлических сильно вытянутых сфероидальных наночастиц. Напомним, уравнение (5.15) справедливо только в том частотном интервале, для которого большая ось сфероида значительно меньше длины волны возбуждения.

Используя приведенный выше подход, можно проанализировать сферы или эллипсоиды, покрытые концентрическим слоем иного материала. Поскольку частицы ядро/оболочка, состоящие из диэлектрического ядра и тонкой металлической оболочки, с недавних пор вызывают большой интерес в плазмонике ввиду перестраиваемости плазмонного резонанса, представим результаты для поляризуемости шара со сферическим покрытием, с радиусом шара a_1 потенциала с диэлектрической проницаемостью $\varepsilon_1(\omega)$ и внешним радиусом оболочки a_2 материала с диэлектрической проницаемостью $\varepsilon_2(\omega)$ [Bohren and Huffman, 1983]. В рассматриваемом случае поля-

ризуемость определяется формулой

$$\alpha = 4\pi a_2^3 \frac{(\varepsilon_2 - \varepsilon_m)(\varepsilon_1 + 2\varepsilon_2) + f(\varepsilon_1 - \varepsilon_2)(\varepsilon_m + 2\varepsilon_2)}{(\varepsilon_2 + 2\varepsilon_m)(\varepsilon_1 + 2\varepsilon_m) + f(2\varepsilon_2 - 2\varepsilon_m)(\varepsilon_1 - \varepsilon_2)}, \quad (5.18)$$

где $f = a_1^3/a_2^3$ определяет отношение характерных объемов.

5.2. Теория Ми

Нами было показано, что рассеяние излучения малым шаром приводит к резонансному усилению поляризуемости α (5.7) при выполнении условия Фрелиха (5.8). В этих условиях наночастица ведет себя как электрический диполь, резонансно поглощая и рассеивая электромагнитные поля. Теория плазмонного резонанса в приближении *дипольной* частицы имеет место для малых частиц, представленные выше расчеты обеспечивают достаточно хорошее приближение для сферических или эллипсоидальных частиц диаметром менее 100 нм, возбуждаемых видимым или ближним инфракрасным излучением.

В случае частиц большого размера, на которые не распространяется квазистатическая аппроксимация поля вследствие фазовых сдвигов в объеме частицы, требуется строгий подход. В 1908 г. в известном научном докладе Ми представил полную теорию рассеяния и поглощения электромагнитного излучения сферой, чтобы интерпретировать цвета частиц коллоидного золота [Mie, 1908]. Подход, который в настоящее время известен как *теория Ми*, основан на разложении внутреннего поля и поля, рассеянного сферой в ряды из *нормальных мод*. Квазистатические эффекты, справедливые для сфер размерами меньше длины волны, могут быть получены путем удержания первых членов разложения в степенной ряд коэффициентов поглощения и рассеяния.

Поскольку теория Ми обсуждается в большинстве книг, см., например, работы [Bohnen and Huffman, 1983; Kreibig and Vollmer, 1995], и подробные знания членов более высокого порядка нам не потребуются, в этой главе мы опустим изложение данной теории и изучим физические следствия поправок первого порядка на квазистатическую аппроксимацию.

5.3. За пределами квазистатической аппроксимации и времени жизни плазмона

Получив общие выражения (5.7) и (5.15) для поляризуемости металлической сферы и эллипсоида в квазистатической аппроксимации, проанали-

зируем изменение частоты и ширины плазмонного резонанса частицы для случая, когда использованная нами теория не выполняется. Рассмотрим два случая: первый — для крупных частиц, когда квазистатическая аппроксимация не выполняется из-за эффектов задержки, и второй — для крайне малых металлических частиц радиусом $a < 10$ нм, когда размеры частицы значительно меньше длины свободного пробега электронов.

Для крупных частиц направленное вперед прямое рассеяние ТМ-мод по теории Ми в случае шара объемом V определяется следующей формулой [Meier and Wokaun, 1983; Kuwata et al., 2003]:

$$\alpha_{\text{Sphere}} = \frac{1 - \left(\frac{1}{10}\right) (\varepsilon + \varepsilon_m)x^2 + O(x^4)}{\left(\frac{1}{3} + \frac{\varepsilon_m}{\varepsilon - \varepsilon_m}\right) - \frac{1}{30}(\varepsilon + 10\varepsilon_m)x^2 - i\frac{4\pi^2\varepsilon_m^{3/2}}{3}\frac{V}{\lambda_0^3} + O(x^4)} V, \quad (5.19)$$

где $x = \frac{\pi a}{\lambda_0}$ — безразмерный показатель, равный отношению радиуса к длине волны. По сравнению с квазистатическим решением (5.7) в числителе и знаменателе формулы (5.19) появилось несколько дополнительных членов, у каждого из которых свой физический смысл. Член, квадратичный по x в числителе, учитывает эффекты запаздывания, приводящие к смещению плазмонного резонанса. Квадратичный член в знаменателе также вызывает смещение резонанса вследствие *деполяризующего поля* внутри частицы [Meier and Wokaun, 1983]. Для приближения Друде в благородных металлах имеет место смещение в сторону меньших энергий: спектральное положение дипольного резонанса смещается в красную сторону при увеличении размера частицы. Интуитивно это можно понять, признав, что расстояния между зарядами с противоположных границ частицы увеличиваются с ее размером, что приводит к уменьшению восстанавливающей силы и снижению резонансной частоты. Такое смещение в красную сторону спектра также подразумевает, что эффекты межзонных переходов (характеризуемые увеличением $\text{Im}[\varepsilon_2]$), не учитываемые по теории Друде, малы, т. к. плазмонный резонанс далек от края межзонного перехода.

Квадратичный член в знаменателе также изменяет величину поляризации, уменьшая влияние поглощения из-за мнимой части ε . Увеличение поглощения связано с третьим мнимым членом знаменателя, который ответственен за *затухание излучения*. Включение членов более высокого порядка в выражение (5.19) приведет к возникновению резонансов высшего порядка, речь о которых пойдет в следующем разделе.

Затухание излучения вызывается также радиационным излучением электронами фотонов [Kokkinakis and Alexopoulos, 1972] и является основной причиной ослабления мощности дипольного плазмонного резонанса при увеличении объема частицы [Wokaun et al., 1982]. Таким образом, несмотря на то, что увеличение объема частицы уменьшает мощность за счет поглощения, плазмонный резонанс все-таки может наблюдаться.

Из изложенного можно сделать вывод о том, что плазмонный резонанс, выходящий за пределы квазистатического режима, затухает под действием двух конкурирующих процессов (рис. 5.4): процесс излучения фотонов, доминирующий в случае крупных частиц, и неизлучательный процесс поглощения. Неизлучательный процесс вызван рождением электронно-дырочной пары либо вследствие внутризонных возбуждений, либо вследствие межзонных переходов из нижних зон в зону проводимости sp (например для благородных металлов). Дополнительную информацию о физике затухания можно почерпнуть из работ [Link and El-Sayed, 2000; Sonnichsen et al., 2002].

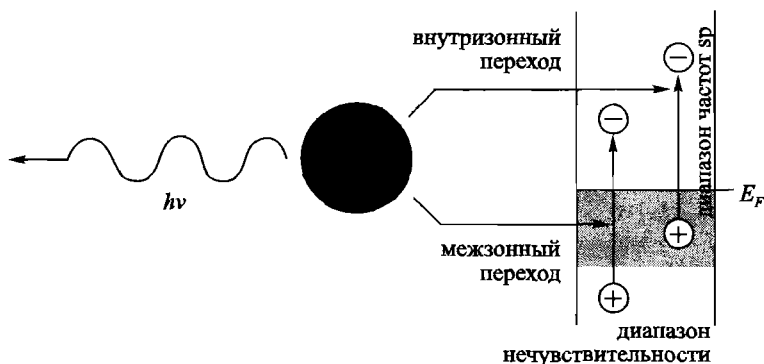


Рис. 5.4. Схематическое изображение излучательного (слева) и безызлучательного (справа) распада плазмонов частицы

Для того чтобы перейти к количественным характеристикам, оба рассмотренных нами процесса затухания можно объединить в простую феноменологическую двухуровневую модель плазмонного резонанса, предложенную в работе [Heilweil and Hochstrasser, 1985]. С использованием данной модели ширину спектральной линии плазмонного резонанса Γ можно связать с экстинкцией, связанной с внутренними процессами затухания, путем введения времени T_2 . В энергетических единицах соотношение между Γ

и T_2 будет выглядеть следующим образом:

$$\Gamma = \frac{2\hbar}{T_2}. \quad (5.20)$$

Мы заметили, что по аналогии с диэлектрическими резонаторами для плазмонного резонанса можно ввести *добротность* Q , определяемую как $Q = E_{\text{res}}/\Gamma$, где E_{res} является энергией резонанса.

В этом подходе дефазировка когерентного возбуждения вызвана либо энергетическим распадом, либо рассеянием, не меняющим энергию электрона, но меняющим его импульс. Эти факты удобно феноменологически выразить с помощью обратных величин T_2 времени релаксации населенностей и времени распада T_1 , характеризующих как излучательный, так и безызлучательный процессы потери энергии, а также *времени дефазировки* T_2^* как результат упругих столкновений:

$$\frac{1}{T_2} = \frac{1}{2T_1} + \frac{1}{T_2^*}. \quad (5.21)$$

Детальное изучение распада плазмона, например с помощью экспериментов под накачке и последующему зондированию, показало, что в общем случае $T_2^* \gg T_1$ [Link and El-Sayed, 2000], таким образом, $T_2 = 2T_1$. Для малых наночастиц золота и серебра в общем случае $5 \text{ фемтосекунд} \leq T_2 \leq 10 \text{ фемтосекунд}$ в зависимости от размера и окружения материала подложки. На рис. 5.5 показано наблюдаемое время дефазировки для наносфер золота и серебра различных диаметров, исследуемых с помощью микроскопии по методу темного поля. На этом рисунке величина распада плазмона выражена через Γ и T_2 , связанные выражением (5.20). В случае золота наблюдаемое время распада объяснялось с использованием теории Ми и измеренных диэлектрических данных [Johnson and Christy, 1972]. В случае серебра соответствие теории несколько хуже, и особенно в случае сфер малого радиуса, для которых наблюдается значительное снижение времени дефазировки, возможно, вследствие процессов затухания на поверхности частицы.

Относительные вклады излучательного и безызлучательного процессов на время дефазировки T_1 играют определяющую роль в тех областях применения, где следует избегать простого нагрева или тушения флуоресценции молекул вблизи металлических наноструктур. В этом случае должен доминировать процесс излучательного распада. Для достижения этого Sönnichsen с коллегами провели исследование в целях максимизации излучательного вклада $T_{1,r}$ на общее время распада относительно неизлучательного вклада $T_{1,nr}$ в наностержнях золота с различными соотношениями

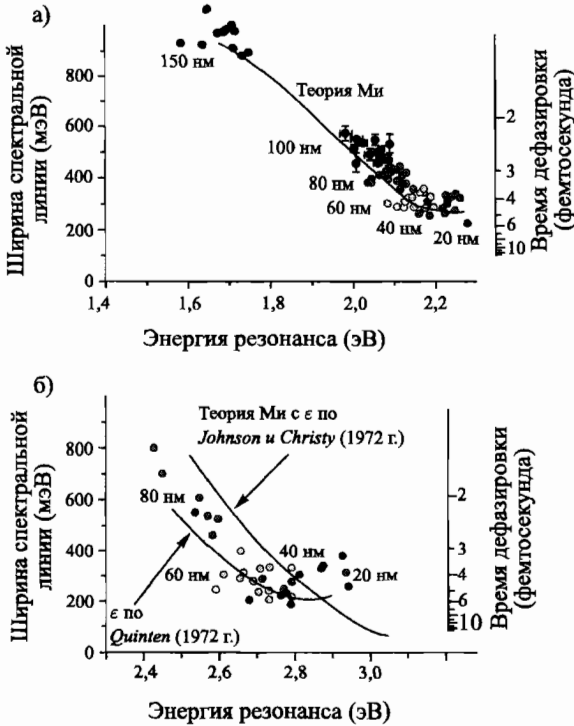


Рис. 5.5. Ширина спектральной линии плазмонного резонанса наносфер (а) золота и (б) серебра, измеренная с помощью микроскопии по методу темного поля, и ее сравнение с расчетными значениями согласно теории Ми [Sönnichsen et al., 2002a]. © Institute of Physics, 2002. Используется с разрешения правообладателя

сторон [Sönnichsen et al., 2002b], что соответствует максимальной квантовой эффективности η для резонансного рассеяния света, определяемой по формуле

$$\eta = \frac{T_{1,r}^{-1}}{T_1^{-1}} = \frac{T_{1,r}^{-1}}{T_{1,r}^{-1} + T_{1,nr}^{-1}}. \quad (5.22)$$

В этом исследовании время распада для наностержней достигло предельного значения $T_2 \approx 18$ фемтосекунд для стержня с соотношением сторон 3 : 1, которое значительно превышает время дефазировки наносфер золота аналогичного объема (см. рис. 5.5). Предположительно это является следствием уменьшения безызлучательного затухания, вызванного изме-

нением сферической геометрии на сфероидальную: мода продольной оси смещается в сторону меньших энергий, ограничивая таким образом влияние межзонных переходов.

Обратимся к рассмотрению малых металлических частиц. Для частиц золота и серебра радиусом $a < 10$ нм необходимо учитывать дополнительный процесс затухания, связанный с *размытием границ*. В этом случае скорость дефазировки когерентного колебания увеличивается вследствие упругого рассеяния электронов на поверхности частицы, поскольку размер частицы меньше длины свободного пробега электрона (порядка 30–50 нм). Это объясняет наблюдаемое снижение времени распада для малых частиц серебра представленных на рис. 5.5. Эмпирически можно представить изменение наблюдаемой ширины спектральной линии плазмона Γ_{obs} с помощью формулы [Kreibig and Vollmer, 1995]

$$\Gamma_{\text{obs}}(R) = \Gamma_0 + \frac{Av_F}{R}. \quad (5.23)$$

В данном случае Γ_0 описывает ширину спектральной линии плазмона частиц, выходящих за пределы режимов, в которых доминирует затухание границы раздела или затухание излучения, т. е. где Γ определяется только по $\text{Im}[\varepsilon(\omega)]$. v_F — скорость Ферми электронов, а $A \approx 1$ — подгоночный коэффициент, вычисляемый из данных рассеяния [Hövel et al., 1993]. Смещения энергии резонанса были зарегистрированы для частиц размером менее 10 нм. При этом направление смещения зависит от состояния поверхности частицы, в ходе эксперимента наблюдались смещения как в синюю, так и в красную стороны спектра (обзор результатов представлен в [Kreibig and Vollmer, 1995]).

До настоящего момента наше представление о взаимодействии малой металлической частицы с электромагнитной волной было классическим, для частиц размером порядка или менее 1 нм начинают появляться квантовые эффекты. Причина, по которой квантовой природой уровней энергии можно пренебречь для обсуждаемых размеров частиц, является большая концентрация электронов проводимости в металлах $n \approx 10^{23} \text{ см}^{-3}$. Однако в случае относительно малого количества электронов $N_e = nV$ количество энергии, полученной отдельными электронами от падающего фотона, $\Delta E \approx \frac{\hbar\omega}{N_e}$ становится сравнимым с $k_B T$. В этом режиме понятие плазмона как когерентного колебания электрона становится неприменимым, и задача должна решаться с использованием квантово-механического представления о переходах электронов. Рассмотрение этих процессов [Kreibig and Vollmer, 1995] выходит за границы данной книги.

5.4. Наблюдение плазмонов в частицах

Локализованные плазмонные резонансы можно наблюдать с помощью микроскопии экстинкции дальнего поля на коллоидных или изготовленных металлических наноструктурах под действием видимого света. Удобным способом для создания структур различной формы, хотя, по сути, планарной природы, является электронно-лучевая литография, сопровождаемая процессом обратной литографии для формирования металлизированного слоя. В случае использования микроскопии дальнего поля для достижения допустимого отношения сигнал/шум для малых размеров наночастиц с $d \ll \lambda_0$ требуется выполнение специальных условий. Как правило, частицы размещаются на квадратной решетке [Craighead and Niklasson, 1984] с достаточно большим расстоянием между частицами в целях предотвращения взаимодействия из-за дипольной связи, речь о которой пойдет в следующем разделе. Несмотря на затухание возбуждения, вызванное поглощением (и в меньшей мере рассеянием, пока $a \ll \lambda_0$), для частиц одинаковой формы, получаемой электронно-лучевой литографией, можно наблюдать линии резонанса, близкие к форме линий резонанса одиночной частицы.

На рис. 5.6 показаны примеры спектров экстинкции золотых нанопроволок различной длины, изготовленных с помощью электронно-лучевой литографии. Поскольку длина нанопроволоки d сопоставима или превышает λ_0 , благодаря возбуждению мод высокого порядка на рисунке ясно видны несколько резонансов. Вследствие эффектов задержки, которые мы обсудили в предыдущем разделе, дипольный резонанс полностью смещается в красную сторону спектра с энергиями, меньшими энергии источника освещения.

В отличие от методов микроскопии дальнего поля, оптическая микроскопия темного поля и оптическая микроскопия ближнего поля позволяют наблюдать плазмонные резонансы *одной* частицы. В оптической микроскопии темного поля улавливается рассеиваемый исследуемой структурой свет, тогда как проходящий напрямую свет блокируется. Это позволяет изучать отдельные частицы, находящиеся на подложке. На рис. 5.7 показаны формы линий рассеяния коллоидных частиц серебра различной формы. Другие исследования посвящены изучению резонансов металлических нанопроволок, состоящих из сегментов различных металлов [Mock et al., 2002b], и влиянию коэффициента преломления на плазмонный резонанс [Mock et al., 2003]. Подобная схема успешно применяется для исследования биологических объектов, где наблюдаются смещения резонанса вследствие взаимодействия отдельных частиц, данные вопросы будут более подробно рассматриваться в главе 10.

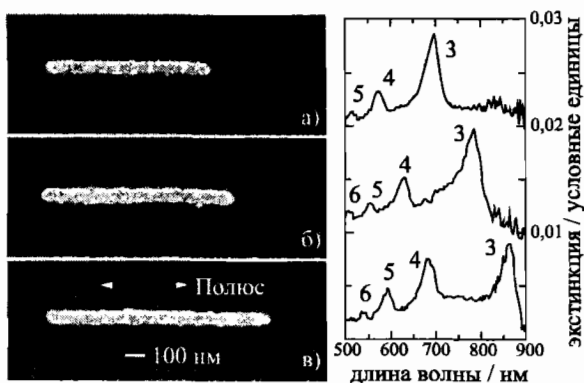


Рис. 5.6. Изображение, полученное сканирующей электронной микроскопией (СЭМ) (слева), и спектры (справа) для золотых нанопроволок под воздействием света, поляризованного вдоль продольной оси (а) 790 нм, (б) 940 нм и (в) 1090 нм. Длина малой оси и высота составляют 85 нм и 25 нм соответственно. Числа над пиками спектра указывают порядок возбуждения [Krenn et al., 2000]. © American Institute of Physics, 2000. Используется с разрешения правообладателя

В оптической спектроскопии ближнего поля тонкий (металлизированный или непокрытый) волоконный наконечник с апертурой порядка 100 нм подводится непосредственно к частице с помощью соответствующей схемы обратной связи. После этого плазмонные резонансы могут быть возбуждены либо с помощью освещения через наконечник и зафиксированы в дальнем поле, либо возбуждены с помощью освещения со стороны подложки и зафиксированы через наконечник. Например, такие исследования позволили определить ширину линии Γ одной наночастицы [Klar et al., 1998] и получить прямое изображение полей [Hohenau et al., 2005a], а также изучить дисперсионное соотношение для наностержней золота [Imura et al., 2005]. Дополнительная информация по стандартным схемам представлена в разделе главы 10, посвященном спектроскопии.

В заключение данного раздела обсудим результаты по влиянию размеров наностержней на дипольный плазмонный резонанс, проведенный с помощью оптической спектроскопии темного поля [Kuwata et al., 2003]. На рис. 5.8 представлены изображения рассеянного света и формы линий плазмонов (сплошные линии) различных наночастиц золота. С помощью этих данных Кувата с коллегами вывели эмпирическое правило для вычисления поляризуемости, используя формулу (5.19) для эллипсоидальных структур. Для частиц объемом V с размерным показателем x поляризуемость вдоль

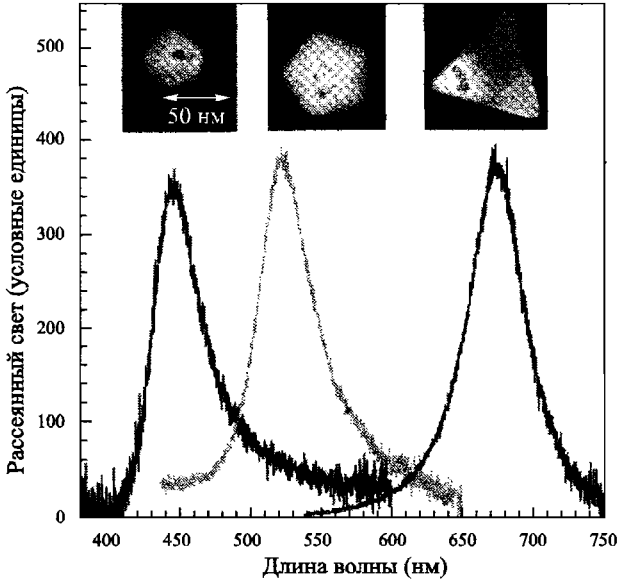


Рис. 5.7. Спектры рассеяния одиночных наночастиц серебра различной формы, полученные в темном поле [Mock et al., 2002a]. © American Institute of Physics, 2002. Используется с разрешения правообладателя

главной оси с геометрическим коэффициентом L можно выразить следующим образом:

$$\alpha \approx \frac{V}{\left(L + \frac{\varepsilon_m}{\varepsilon - \varepsilon_m}\right) + A\varepsilon_m x^2 + B\varepsilon_m^2 x^4 - i \frac{4\pi^2 \varepsilon_m^{3/2}}{3} \frac{V}{\lambda_0^3}}. \quad (5.24)$$

С использованием эмпирических данных о спектрах на рис. 5.8 были получены следующие зависимости A и B от L :

$$A(L) = -0.4865L - 1.046L^2 + 0.8481L^3, \quad (5.25a)$$

$$B(L) = 0.01909L + 0.1999L^2 + 0.6077L^3. \quad (5.25b)$$

Точки на кривых рис. 5.8 соответствуют экстинкции, рассчитанной по формуле (5.24). Оказалось, что эти соотношения справедливы как для частиц золота, так и для частиц серебра.

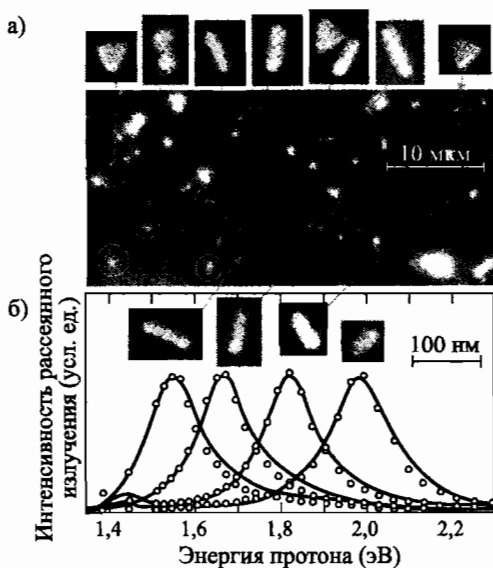


Рис. 5.8. Оптические изображения, полученные методом темного поля, и изображения СЭМ (а) отдельных наночастиц золота, (б) соответствующих спектров рассеянного излучения для поляризации света, направленной вдоль продольной оси частицы. Линии соответствуют экспериментальным данным, кружки — результаты численного расчета с использованием формулы (5.24) [Kuwata et al., 2003]. © American Institute of Physics, 2003. Используется с разрешения правообладателя

5.5. СВЯЗЬ МЕЖДУ ЛОКАЛИЗОВАННЫМИ ПЛАЗМОНАМИ

Мы показали, что локализованный плазмонный резонанс металлической наночастицы может сдвигаться относительно частоты Фрелиха, определяемой по формуле (5.8), при изменении формы и размера частицы. В ансамблях частиц возможно появление дополнительных сдвигов ввиду электромагнитного взаимодействия между модами, локализованными в отдельных частицах. В случае малых частиц эти взаимодействия фактически имеют биполярную природу, и ансамбль частиц при первой аппроксимации может рассматриваться как ансамбль взаимодействующих диполей.

Рассмотрим результаты взаимодействия в упорядоченных массивах металлических наночастиц. Электромагнитное взаимодействие в неупорядоченных массивах, где интересные эффекты локализации могут возникнуть у близкорасположенных частиц, более подробно будут рассмотрены

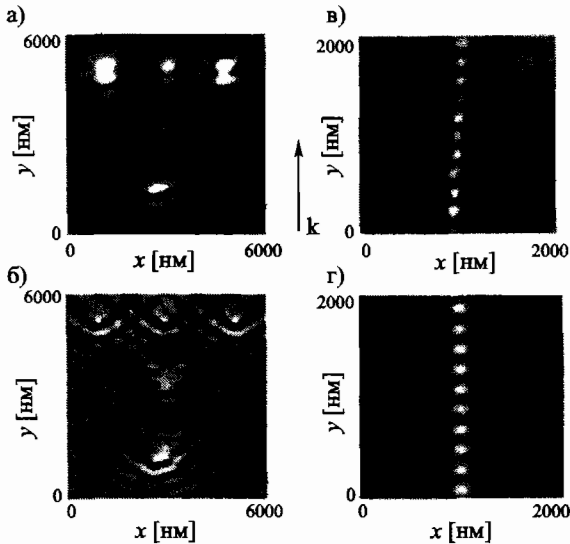


Рис. 5.9. Экспериментально наблюдаемое (а, в) и смоделированное (б, г) распределение интенсивности оптического поля над удаленными частицами золота (а, б) и близкорасположенными частицами золота (г, д). Если для отдельных частиц видны эффекты интерференции полей рассеянного излучения, то в цепочке частиц поля удерживаются в зазорах между ближайшими частицами. Для возбуждения плазмонных резонансов использовался призмный ввод [Krenn et al., 2001]. © Blackwell Publishing, 2001. Используется с разрешения правообладателя

в главе 9 при обсуждении процессов усиления вследствие локализации поля в ансамблях частиц. Предположим, что частицы размера a размещены в упорядоченный одномерный или двумерный массив с расстоянием между частицами d . Допустим, что $a \ll d$ и выполнено приближение дипольной аппроксимации, в результате частицы можно рассматривать как точечные диполи. В зависимости от расстояния между частицами различают два режима. Для близкорасположенных частиц с $d \ll \lambda$ взаимодействие в ближнем поле преобладает, и зависимость от расстояния пропорциональна d^{-3} , в результате массив частиц можно представить как массив точечных диполей, взаимодействующих в ближних полях (см. (5.11)). В этом случае для регулярных одномерных цепочек частиц наблюдается локализация поля в промежутках между частицами [Krenn et al., 1999]. Локализация поля вследствие блокировки рассеянного излучения в дальнем поле путем возбуждения плазмонных мод в частицах вдоль оси цепочки образует пару

под действием взаимодействия в ближнем поле. Эта ситуация отражена на рис. 5.9, где показано наблюдаемое в эксперименте (а, в) и смоделированное (б, г) распределение электрического поля над одиночными наночастицами золота и цепочкой частиц. В этом исследовании Кренн с коллегами использовал в эксперименте призмный ввод со стороны подложки, а оптическое поле изучалось с помощью микроскопии ближнего поля. На изображениях, полученных в эксперименте, поля локализируются между частицами. Следовательно, эти позиции между частицами могут служить «горячими точками» поля, что будет более подробно рассматриваться в главе 9 применительно к поверхностному комбинационному рассеянию (SERS).

Нетрудно понять, что электромагнитное взаимодействие между частицами может привести к спектральному сдвигу положения плазмонного резонанса по сравнению со случаем изолированной частицы. С помощью простого приближения в виде массива взаимодействующих точечных диполей, направление смещений резонанса можно определить с учетом кулоновских сил, связанных с поляризацией частиц. Как показано на рис. 5.10, восстанавливающая сила, действующая на осциллирующие электроны каждой частицы в цепочке, либо увеличивается, либо уменьшается в зависимости от распределения зарядов на соседних частицах. Направление поляризации света приводит к смещению плазмонного резонанса в синюю либо красную область спектра в зависимости от возбуждения поперечных либо продольных мод.

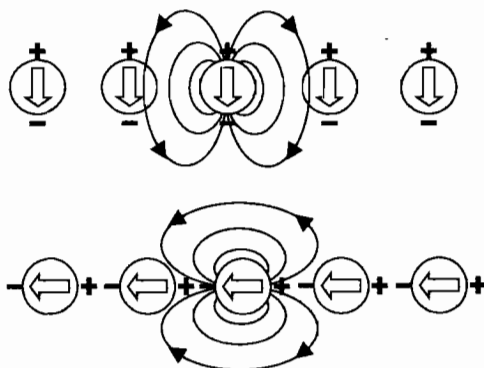


Рис. 5.10. Схематическое изображение ближних полей между металлическими наночастицами для двух различных поляризаций

При использовании одномерных массивов частиц золота размером 50 нм для различных расстояний между частицами (рис. 5.11а) экспери-

ментально измерены частоты резонансов методом спектроскопии дальнего поля [Maier et al., 2002a]. Зависимость спектрального положения плазмонных резонансов от расстояния между частицами показана на рис. 5.11b как для продольной, так и для поперечной поляризаций. Ввиду быстрого спада взаимодействия d^{-3} (см. рис. 5.11) для частиц, удаленных друг от друга на расстояние более чем на 150 нм, плазмонный резонанс цепочки соответствовал резонансу одиночной частицы.

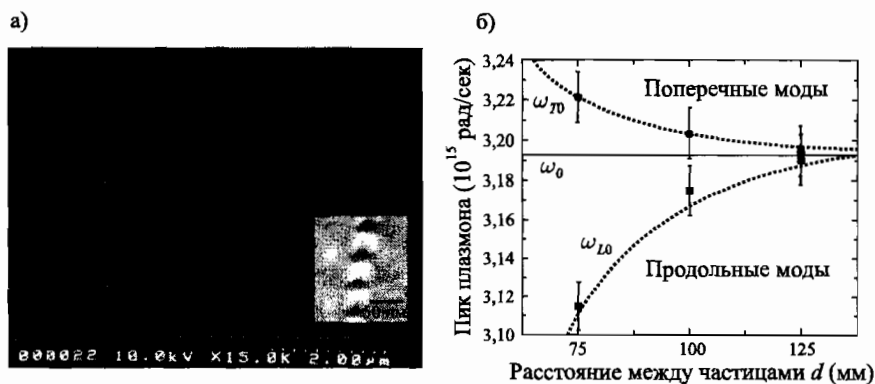


Рис. 5.11. Изображение массива близкорасположенных наночастиц золота (а), полученное с помощью СЭМ, (б) зависимость частоты от расстояния между частицами. Пунктирные линии показывают зависимость d^{-3} для связи, ожидаемой в модели точечных диполей [Maier et al., 2002a]. © American Physical Society, 2002. Используется с разрешения правообладателя

Характерный масштаб взаимодействия в ближнем поле можно найти из эксперимента, проанализировав зависимость положения резонанса от длины массива частиц [Maier et al., 2002b]. На рис. 5.12 представлены результаты численных расчетов по методу конечных разностей (FDTD) и сравнение этих данных с экспериментом, полученным для цепочек наночастиц золота с фиксированным расстоянием между частицами и различной длиной цепочек. При моделировании по методу FDTD отслеживались временные зависимости электрического поля в центральной частице цепочки, состоящей из семи золотых сфер размером 50 нм, удаленных друг от друга на расстояние 75 нм в воздухе (в левой части рисунка). В верхней части рисунка показано исходное электрическое поле вокруг структуры перед возбуждением, в нижней части — преобразование Фурье временных зависимостей, которые имеют максимум на частоте продольного резонан-

са E_L . Сравнение с данными для цепочек, изготовленных на кремниевой подложке при помощи электронно-лучевой литографии, показано в правой части рисунка (а). Очевидно, что энергии плазмонных резонансов как для продольных (E_L), так и для поперечных (E_T) возбуждений в массиве наночастиц золота различны, ближняя связь проявляется уже при длине цепочки, равной 5. Связь между ближайшими частицами можно изменить, если частицы имеют вид сфероидов (рис. 5.12б). Отметим, вследствие взаимодействия в ближнем поле массив близкорасположенных металлических наночастиц можно рассматривать как цепочку взаимодействующих диполей, в которой могут распространяться волны поляризации. Это позволяет использовать цепочки металлических частиц в качестве волноводов с высокой степенью удержания поля; данные вопросы более подробно будут рассмотрены в главе 7.

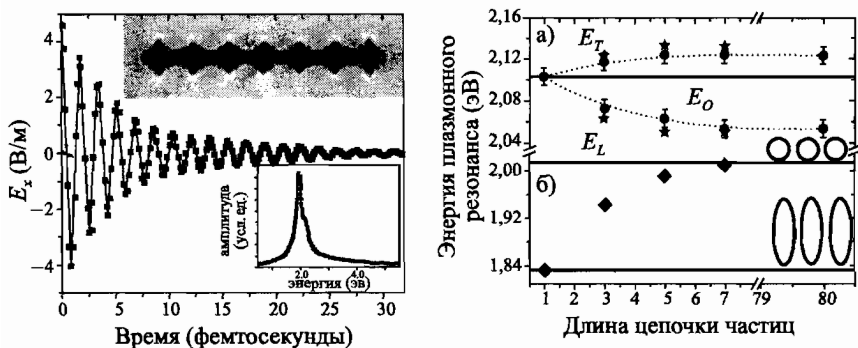


Рис. 5.12. Левый рисунок: временная зависимость электрического поля, наблюдаемая в центральной части цепочки, состоящей из семи золотых сфер размером 50 нм, удаленных друг от друга на расстояние 75 нм в воздухе, полученная с помощью метода FDTD. Дополнительную информацию см. в тексте. Правый рисунок: а) энергия плазмонного резонанса для продольных (E_L) и поперечных (E_T) возбуждений в массиве наночастиц золота (в той же геометрии, как в левой части), полученных путем спектроскопии дальнего поля на экспериментально изготовленных массивах частиц (точки) и численно рассчитанных методом FDTD (звезды). б) Результаты численного расчета энергий плазмонных резонансов для поперечных возбуждений массива сфероидов золота с соотношением сторон 3 : 1 (ромбы) [Maier et al., 2002b]. © American Institute of Physics, 2002. Используется с разрешения правообладателя

Изучение работ, в которых использовались методы ближнего и дальнего полей, подтвердило характер зависимости взаимодействий в массивах частиц от расстояний [Su et al., 2003; Sundaramurthy et al., 2005]. Бо-

лее подробный анализ взаимодействий в ближних полях в ансамблях частиц различной формы с использованием теории Ми содержится в работе [Quieten and Kreibig, 1993]. Взаимодействия в ближних полях могут влиять на плазмонные резонансы изолированной частицы сложной формы, например, имеющей структуру в форме полумесяца с близко расположенными друг к другу острыми краями [Kim et al., 2005]. Для частиц с большими межчастичными расстояниями доминирует полярная связь дальних полей с зависимостью от межъядерных расстояний d^{-1} (см. (5.12)). Эта связь анализировалась как для двумерных массивов, подобных дифракционной решетке [Lamprecht et al., 2000; Naupen et al., 2003], так и для одномерных цепочек с расстояниями между частицами, превышающими расстояния, для которых выполняется приближение ближнего поля [Hicks et al., 2005]. На примере двумерных решеток из наночастиц золота с различными периодами решетки на рис. 5.13 показано, что приближение дальнего поля определяет форму линии плазмона как по резонансной частоте, так и по ширине спектра. Последнее вызвано зависимостью времени распада T_2 от длины периода решетки из-за ее влияния на величину затухания излучения, т. к. различные максимумы дифракционной решетки меняют характер излучения. В упомянутой работе время распада колебаний плазмонов определялось непосредственно из измерений с высоким временным разрешением.

В экспериментах было замечено — взаимодействия между металлическими наночастицами можно усилить, обеспечив дополнительные пути

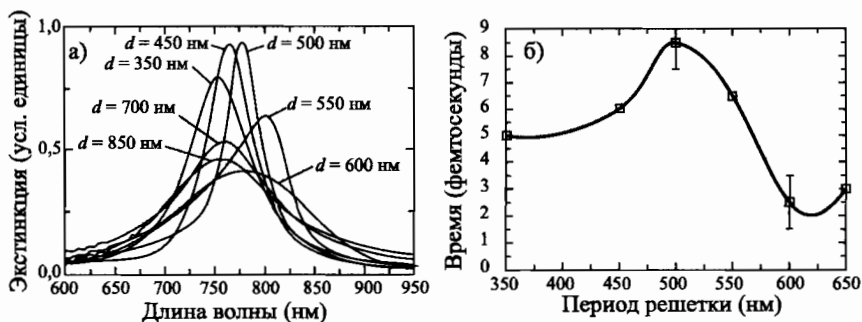


Рис. 5.13. (а) Спектр экстинкции для квадратных двумерных дифракционных решеток наночастиц золота (высотой 14 нм, диаметром 150 нм) с периодом решетки d , размещенных на стеклянной подложке. (б) Время распада плазмона в зависимости от периода решетки, наблюдаемое в измерениях. Сплошная кривая — результат аппроксимации [Lamprecht et al., 2000]. © American Institute of Physics, 2000. Используется с разрешения правообладателя

связей, например, в форме распространяющихся ППП для массивов частиц, изготовленных на электропроводящей подложке [Feldj et al., 2002].

5.6. Плазмоны в нановключениях и металлических наноболочках

Вернемся к обсуждению плазмонных резонансов в отдельных частицах, обратив внимание на локализованные моды в металлических структурах, содержащих диэлектрические включения с характерным размером $a \ll \lambda$. Наиболее простым примером подобной структуры является сферическое включение с диэлектрической проницаемостью ε_m в однородную металлическую среду, характеризуемую диэлектрической проницаемостью $\varepsilon(\omega)$, как показано на рис. 5.14. Такое *нановключение* может обеспечить существование электромагнитного дипольного резонанса, подобного резонансу металлической наночастицы. Фактически эффект дипольного момента полости можно получить из известного решения для шара с помощью замены $\varepsilon(\omega) \rightarrow \varepsilon_m$ и $\varepsilon_m \rightarrow \varepsilon(\omega)$ в выражении (5.7). Таким образом, поляризуемость нановключения определится из формулы

$$\alpha = 4\pi a^3 \frac{\varepsilon_m - \varepsilon}{\varepsilon_m - 2\varepsilon}. \quad (5.26)$$

Обратите внимание, в отличие от металлических наночастиц, индуцированный дипольный момент в данном случае имеет противоположное направление относительно внешнего поля. Условие Фрелиха в данном случае примет следующий вид:

$$\operatorname{Re}[\varepsilon(\omega)] = -\frac{1}{2} \varepsilon_m. \quad (5.27)$$

Важным примером трехмерного резонанса в нановключении является резонанс частицы ядро/оболочка, состоящей из диэлектрического ядра (как правило, кремниевого) и тонкой металлической оболочки (например из золота). Для анализа поляризуемости системы ядро/оболочка можно воспользоваться квазистатической теорией Ми, используя выражение (5.18). В работе Продана с сотрудниками было показано, что две основные полярные моды наночастицы ядро/оболочка могут возникать вследствие гибридизации полярных мод металлической сферы и диэлектрического включения в металлической подложке (рис. 5.15) [Prodan et al., 2003b]. На этом рисунке два четко различимых резонанса наноболочки являются следствием связывающих и антисвязывающих мод шара и нановключения. Более точно данная

модель была подтверждена с помощью аналогий из квантовой механики [Prodan and Nordlander, 2003; Prodan et al., 2003a], а также с помощью методов математического моделирования по методу конечных разностей [Oubre and Nordlander, 2004].

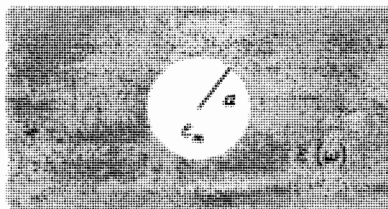


Рис. 5.14. Сферическое диэлектрическое включение в однородном металле

Для количественного описания гибридизации плазмонов, связанных с геометрией, представленной на рис. 5.15, возникающий плазмон в частице можно охарактеризовать как смещение электронов проводимости металлической наноструктуры [Prodan et al., 2003b]. Эти смещения можно выразить с помощью сферических гармоник порядка l , в результате резонансные частоты $\omega_{l,\pm}$ двух гибридизированных мод можно записать как

$$\omega_{l,\pm}^2 = \frac{\omega_p^2}{2} \left[1 \pm \frac{1}{2l+1} \sqrt{1 + 4l(l+1) \left(\frac{a^{2l+1}}{b} \right)} \right], \quad (5.28)$$

где a и b являются внутренним и наружным радиусами оболочки соответственно. Данная модель гибридизации успешно применяется для расчета резонансных частот димеров наночастиц [Nordlander et al., 2004].

Дополнительные степени свободы при контроле плазмонного дипольного резонанса в геометрии нанооболочки допускают как сдвиги резонансных частот в ближнюю инфракрасную область спектра, так и дополнительно уменьшают ширину линий плазмона [Teperik and Popov, 2004; Westcott et al., 2002]. Последний факт позволяет предположить, что нанооболочки по своим свойствам могут быть предпочтительнее металлических наночастиц в ряде приложений [Raschke et al., 2004; Tam et al., 2004]. Сильно локализованные плазмонные резонансы в ближней инфракрасной области спектра представляют интерес для биомедицины, например, для лечения опухолей, содержащих наночастицы, которые разрушаются под воздействием теплоты в результате поглощения [Hirsch et al., 2003].

Несмотря на то, что рассмотренные включения имеют трехмерную размерность, в принципе, двумерные отверстия в тонких металлических

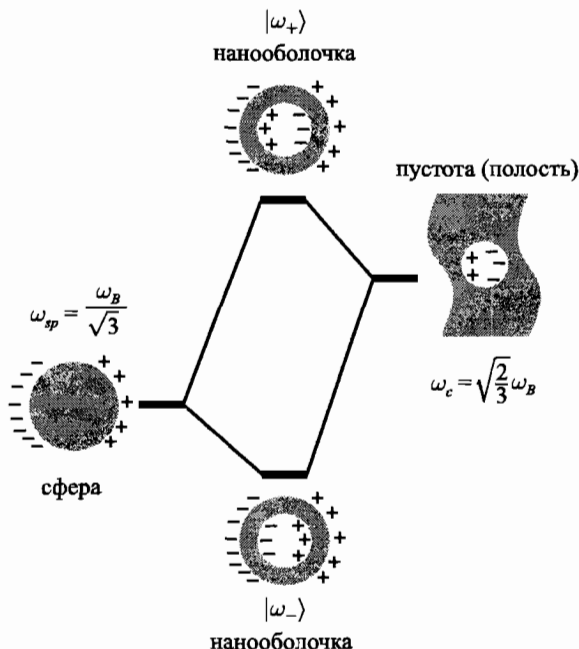


Рис. 5.15. Схематическое изображение гибридизации плазмонов в металлических нанооболочках. Обратите внимание на то, что $\omega_B \equiv \omega_p$ [Prodan et al., 2003b]. © AAAS, 2003. Используется с разрешения правообладателя

пленках также могут поддерживать локализованные плазмонные моды. Такие структуры можно изготовить, например, при помощи травления ионным пучком, а изучать их с помощью оптической спектроскопии ближнего поля [Prikulis et al., 2004; Yin et al., 2004]. Подобная геометрия является перспективной с точки зрения сбора данных при считывании информации [Rindzevicius et al., 2005]. Интересные свойства этих систем более подробно будут рассмотрены в главе 8.

5.7. Локализованные плазмоны в усиливающей среде

В заключительном разделе мы представим краткий обзор развивающегося направления в плазмонике, а именно — использование взаимодействия локализованных резонансов с усиливающей средой. Данное направление представляет интерес по двум причинам: усиление поля, поддерживаемое

металлическими наноструктурами при резонансном возбуждении, приводит к снижению порога достижения инверсии в оптически активной среде, с другой стороны, усиление может противодействовать собственным потерям на поглощение в металле. Усиление плазмонных резонансов в усиливающей среде до настоящего времени не было подтверждено экспериментально, но удалось наблюдать увеличение флуоресценции вследствие усиления поля в комбинациях лазерных красителей с металлическими наночастицами [Dice et al., 2005].

В самой простой постановке повышение интенсивности плазмонного резонанса, вызванное усилением, может быть исследовано для случая металлических наносфер размером меньше длины волны, внедренных в однородную среду, с оптическим усилением. Если придерживаться квазистатического подхода, рассмотренного в начале этой главы, усиление может быть получено путем замены действительного коэффициента диэлектрической проницаемости ε_m среды, окружающей шар, на комплексную диэлектрическую проницаемость $\varepsilon_2(\omega)$.

С помощью аналитической модели было показано, что наличие усиления, связанное с $\text{Im}[\varepsilon_2] < 0$, может привести к усилению плазмонного резонанса [Lawandy, 2004]. Это связано с тем, что дополнительно к сокращению действительной части в знаменателе поляризуемости α (5.7) положительная мнимая часть ε_2 , в принципе, может привести к полному сокращению слагаемых знаменателя и, таким образом, к бесконечной величине поляризуемости. Используя формулы для электрических полей (5.9) и введя деполаризующее поле $\mathbf{E}_{\text{pol}} = \mathbf{E}_{\text{in}} - \mathbf{E}_0$ внутри частицы, получим

$$\mathbf{E}_{\text{pol}} = \frac{\varepsilon_2 - \varepsilon}{\varepsilon + 2\varepsilon_2} \mathbf{E}_0. \quad (5.29)$$

Для металлов с ε , заданной по формуле (1.20), в приближении большого времени релаксации по сравнению с периодом поля $\gamma \ll \omega$ необращение в ноль знаменателя в выражении (5.29) при резонансе может быть компенсировано за счет оптического усиления среды. Без учета насыщения усиления можно показать, что критическое значение усиления α_c при плазмонном резонансе ω_0 для образующейся сингулярности можно аппроксимировать как

$$\alpha_c = \frac{\gamma(2 \text{Re}[\varepsilon(\omega_0)] + 1)}{2c\sqrt{\text{Re}[\varepsilon(\omega_0)]}}. \quad (5.30)$$

Для частиц золота и серебра это приводит к $\alpha_c \approx 10^3 \text{ см}^{-1}$. В реальном случае расходимость в усилении поля будет подавляться эффектами насыщения. Дополнительную информацию по данному вопросу читатель может

получить в работе [Lawandy, 2004]. Дальнейшие комментарии по взаимодействию среды с усилением с плазмонами применительно к аспектам распространения будут представлены в главе 7.

ГЛАВА 6

Электромагнитные поверхностные моды на низких частотах

В предыдущих главах было показано, что поверхностные плазмон-поляритоны могут удерживать электромагнитные поля вблизи границы раздела диэлектрик/проводник на расстояниях, меньших длины волны. Такая высокая локализация поля поддерживается до тех пор, пока поля осциллируют с частотами, близкими к собственной плазменной частоте проводника. Как следствие, наиболее перспективные разработки в области плазмоники основаны на использовании *металлов*, среди них волновое распространение с высокой локализацией полей и оптическое сенсорное исследование с беспрецедентной чувствительностью (которые будут рассмотрены во второй части книги), все это ограничивается видимой и ближней инфракрасной областью спектра. Анализ дисперсионного соотношения ППП показывает, что при более низких частотах электромагнитные поля перестают удерживаться на границе раздела сред, поскольку коэффициент распространения уменьшается, стремясь к значению волнового вектора в диэлектрике.

Таким образом, для типичных металлов, к которым относятся золото и серебро, с уменьшением частоты поверхностные плазмон-поляритоны превращаются в световые поля, которые падают на поверхность металла под малым углом и распространяются в диэлектрическом полупространстве на расстояние, во много раз превышающее длину волны. В основе перехода от высоко локализованного поверхностного возбуждения к однородному световому полю в диэлектрике, распространяющемуся вдоль границы раздела сред с фазовой скоростью, как у излучения в бесконечной среде, лежит тот факт, что при низких частотах уменьшается глубина проникновения поля в проводящий слой вследствие большой действительной (отрицательной) и большой мнимой (положительной) составляющих диэлектрической проницаемости. Для обеспечения ненулевой составляющей электрического поля, параллельной поверхности, которая необходима для колебания зарядов, значение имеет амплитуда поля внутри металла, поэтому в пределе *идеального электрического проводника* поверхностные

плазмон-поляритоны перестают существовать. В сильнолегированных полупроводниках плазменные частоты находятся в средней или дальней инфракрасной области спектра, это приводит к затухающим поверхностным плазмон-поляритонам подобно тому, как они распространяются в металлах при частотах видимой области спектра.

На примере терагерцовой спектральной полосы ($0,5 \text{ ТГц} \leq f \leq 5 \text{ ТГц}$), имеющей большое технологическое значение, в этой главе исследуется распространение поверхностных плазмон-поляритонов на плоских границах раздела металла или полупроводника с диэлектриком. Мы покажем, что даже идеальные проводники поддерживают существование электромагнитных поверхностных волн, которые очень похожи на поверхностные плазмон-поляритоны, распространяющиеся по текстурированной поверхности. Физика этих искусственно созданных или ложных плазмонов очень богата; она лежит в основе ряда важнейших разработок, таких как высокочувствительные сенсоры и ближнеполевые микроскопы, использующие терагерцевые волны. В конце главы мы кратко рассмотрим поверхностные фоновые поляритоны, представляющие собой согласованные возбуждения электромагнитного поля и фоновые моды полярных материалов, таких как карбид кремния SiC, на частотах средней инфракрасной области спектра, хотя эти вопросы и не связаны напрямую с плазмоникой.

6.1. Поверхностные плазмон-поляритоны при терагерцовых частотах

В главе 2 подробно говорилось о том, что усиление локализации и удержание поля, обусловленное поверхностными плазмон-поляритонами на границе раздела проводника и диэлектрика с показателем преломления n , объясняется высоким коэффициентом распространения $\beta > k_0 n$, благодаря которому имеет место затухание поля в направлении, перпендикулярном к границе раздела сред. Удержание увеличивается с ростом β согласно формуле (2.13). И наоборот, локализация существенно изменяется при частотах $\omega \ll \omega_p$, где $\beta \rightarrow k_0 n$.

Из-за высокой плотности свободных электронов $n_e \approx 10^{23} \text{ см}^{-3}$ металлы поддерживают распространение хорошо удерживаемых поверхностных плазмон-поляритонов лишь на частотах видимой и ближней инфракрасной области спектра. Из рис. 6.1 следует, что для границы раздела серебро/воздух коэффициент распространения равен $\beta \approx k_0$ при частотах дальней инфракрасной области спектра в терагерцовом режиме, точность составляет 10^{-5} . Это объясняется большой комплексной диэлектрической

проницаемостью $|\varepsilon| \approx 10^5$ и, как следствие, незначительным проникновением поля в проводник и делокализацией поля. На этих же частотах поверхностные плазмон-поляритоны, поддерживаемые металлами, напоминают однородное световое поле в воздухе, падающее под малым углом к поверхности металла, и называются *волнами Зоммерфельда–Зеннека* [Goubau, 1950; Wait, 1998]. Отметим, что все выражения, полученные в главе 2 в контексте распространения поверхностных плазмон-поляритонов на частотах видимой области спектра, справедливы и в низкочастотном режиме при условии, что для металлов используются реалистические диэлектрические данные, например, такие, какие приведены в работе [Ordal et al., 1983].

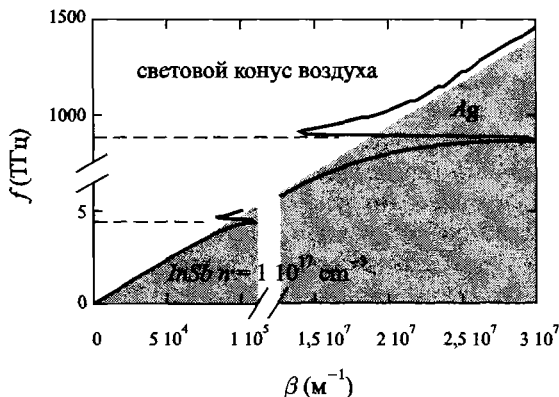


Рис. 6.1. Дисперсионное соотношение ППП для плоской границы раздела серебро/воздух и InSb/воздух (выражаем признательность Стиву Эндрюсу из университета Бата)

На рис. 6.1 также показано дисперсионное соотношение ППП для границы раздела воздуха с сильнолегированным полупроводником, в нашем случае с антимонидом индия InSb, плотность свободных электронов в котором равна $n_e \approx 10^{17} \text{ см}^{-3}$. Из-за меньшей плотности электронов такие полупроводники обеспечивают постоянную распространения ППП $\beta > k_0 n$ и, следовательно, такую же локализацию поля при терагерцовых частотах, как и металлы на частотах видимой области спектра, но с большим коэффициентом поглощения. И действительно, в эксперименте наблюдалось плазмонное распространение широкополосных терагерцовых импульсов на границе раздела сильнолегированного кремния с диэлектриком [Gomez-Rivas et al., 2004]. Один из интригующих моментов применения полупроводников с целью получения низкочастотных ППП без высокой степени удержа-

ния состоит в том, что можно варьировать плотность носителей зарядов и, стало быть, величину ω_p с помощью теплового возбуждения либо генерацией фотонами, либо прямой инъекцией носителей заряда. На основе вышеприведенного примера возможна разработка активных коммутирующих устройств. Используя этот факт, Гомез-Ривас и его коллеги модифицировали брэгговский отражатель поверхностных плазмон-поляритонов на решетке InSb, используя термическую настройку [Gomez-Rivas et al., 2006]. Далее в этой главе основное внимание сосредоточено на металлах, поскольку они позволяют искусственно изменять дисперсию поверхностных волн с помощью изменения геометрии поверхности.

Возбуждение и обнаружение широкополосных терагерцовых импульсов в терагерцовой спектроскопии с разрешением по времени обычно реализует схему генерации и обнаружения когерентного излучения [van Exter and Grischkowsky, 1990]. Такой метод позволяет исследовать не только амплитуду, но и фазу распространяющихся поверхностных плазмон-поляритонов. На рис. 6.2 представлена типичная установка для возбуждения и обнаружения широкополосных терагерцовых импульсов. Короткие световые импульсы, генерируемые фемтосекундным лазером, расщепляются на две световые траектории с помощью полупрозрачного зеркала. Импульсы, распространяющиеся в направлении возбуждения, создают фотоны в терагерцовом излучателе, состоящем из двух смещенных электродов, расположенных на полупроводящей подложке, в результате этого между электродами создается разряд тока и излучаются терагерцовые волны. Импульсы в направлении обнаружения, наоборот, используются для генерации фотонов в несмещенном приемнике. Обнаружение терагерцовых колебаний возможно за счет варьирования временной задержки между двумя траекториями. Часть энергии, переносимая сгенерированным терагерцовым импульсом, преобразуется в поверхностные плазмон-поляритоны методом *внеосевого* или *апертурного ввода излучения*: импульс фокусируется в малом зазоре, размер которого имеет порядок длины волны или меньше ($\lambda \approx 300$ мкм при частоте в 1 ТГц), между лезвием бритвы и структурой, поддерживающей поверхностные плазмон-поляритоны. Рассеяние на остром лезвии дает дополнительные составляющие волнового вектора, которые необходимы для фазовой синхронизации, хотя и малоэффективной.

С помощью рассмотренных широкополосных технологий специалисты исследовали распространение терагерцовых поверхностных плазмон-поляритонов и подтвердили сильно делокализованный характер мод. К примеру, для частот порядка 1 ТГц они продемонстрировали проникновение поверхностных плазмон-поляритонов в воздушное пространство, располо-

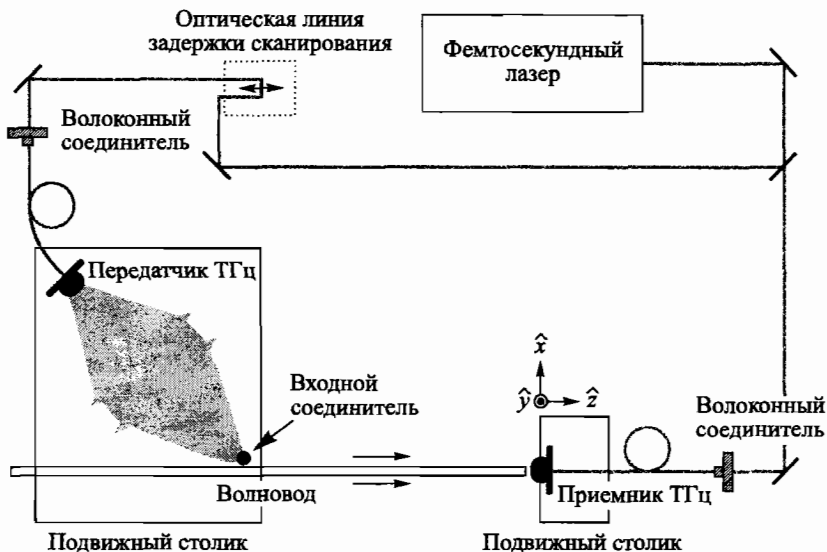


Рис. 6.2. Типичная установка для возбуждения и обнаружения широкополосных THz-импульсов. Возбуждение ППП достигается за счет рассеяния в малом зазоре между проводящей структурой и острым лезвием. Рисунок взят из Macmillan Publishers Ltd: Nature [Wang and Mittleman, 2005] с разрешения правообладателя, © 2004

женное над пленкой золота, на расстояния, превышающие несколько сантиметров [Saxler et al., 2004]. Отметим, что медленное рассеяние волн в диэлектрическую среду — не единственное следствие равенства $\beta = k_0 n$. Фазовая скорость поверхностных волн равна фазовой скорости волн, распространяющихся в свободном пространстве и используемых для генерации импульса. Таким образом, энергия между двумя волнами может передаваться от одной к другой, если они вместе распространяются вдоль границы раздела, что позволяет проводить детальное исследование терагерцовых поверхностных плазмон-поляритонов. Эффективность исследований подтверждается тем фактом, что для терагерцовых ППП, распространяющихся вдоль тонкой алюминиевой пленки, экспериментальные замеры пространственной протяженности волн и длины их затухания отличаются от соответствующих теоретических результатов на величину порядка 1–2 единиц [Jeon and Grischkowsky, 2006]. Расхождение можно объяснить тем, что чистую волну Зоммерфельда–Зеннека очень трудно возбудить в силу ее крайне делокализованного характера.

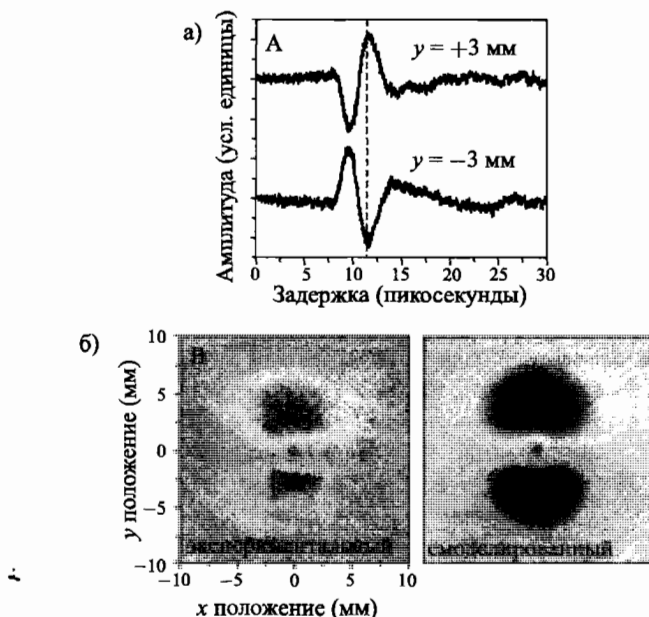


Рис. 6.3. Распространение терагерцовых поверхностных плазмон-поляритонов на неизолированном проводе из нержавеющей стали. а) Колебания электрического поля во временной области в трех миллиметрах выше и ниже провода. б) Экспериментальный и смоделированный пространственные профили моды. Радиальный характер моды очевиден. Рисунок взят из Macmillan Publishers Ltd: Nature [Wang and Mittleman, 2005] с разрешения правообладателя, © 2004

Помимо толстых пленок, делокализованные терагерцовые поверхностные плазмон-поляритоны могут эффективно распространяться в цилиндрических структурах, таких как металлические провода. Используя типичную установку для спектроскопии с разрешением по времени (рис. 6.2), Вэнг и Миттлман провели исследование распространяющихся поверхностных плазмон-поляритонов в тонком проводе из нержавеющей стали [Wang and Mittleman, 2005]. Они пришли к выводу, что эта простая геометрия может оказаться весьма полезной для практической реализации терагерцовых волноводов. В рамках исследования был получен небольшой коэффициент затухания, а именно $\alpha = 0,03 \text{ см}^{-1}$, и подтвержден радиальный характер моды. На рис. 6.3 показан модовый профиль, полученный из анализа формы колебаний электрического поля во временной области, в сравнении с модовым профилем, предсказанным по теории Зоммерфельда [Goubau, 1950].

Дальнейшие исследования лишь подтвердили соответствие теоретического распределения интенсивности экспериментальным данным [Wachter et al., 2005]. Помимо небольшого затухания, условие $\beta = k_0$ обеспечивает крайне низкую дисперсию групповой скорости, благодаря которой возможно неискаженное распространение импульса. Есть, однако, и отрицательное следствие сильно делокализованной природы распространяющихся мод — существенные излучательные потери на сгибах провода [Jeon et al., 2005], т. е. нерегулярностях, ограничивающих практическое применение рассмотренной геометрии.

В результате недавних исследований было доказано, что при терагерцевых частотах можно возбуждать *локализованные* плазмоны. К примеру, кремниевые частицы микронного размера поддерживают дипольные плазмонные резонансы, подобные модам Фрелиха, о которых мы говорили в главе 5. В случае плазмонных резонансов частота зависит от концентрации свободных носителей зарядов n_e согласно формуле $\omega_p \propto \sqrt{n_e}$ [Nienhuys and Sundstrom, 2005]. Локализованные моды также существуют в ансамблях случайно распределенных металлических частиц, что подтверждается экспериментально в опытах по пропусканию терагерцевого излучения [Chau et al., 2005]. Поскольку физика процессов локализации по сути не отличается от физики, рассмотренной нами в применении к наночастицам в области оптических частот, мы не будем вдаваться в ее детали.

6.2. Ложные поверхностные плазмон-поляритоны на гофрированных поверхностях

Ранее было показано, что в силу большой диэлектрической проницаемости металлов в терагерцевом режиме поверхностные плазмон-поляритоны оказываются делокализованными. С физической точки зрения это можно объяснить чрезвычайно малым проникновением поля в металл — лишь ничтожная часть от общей энергии электрического поля моды ППП остается внутри металла. В пределе идеального проводника внутренние поля тождественно равны нулю. Как следствие, идеальные металлы не поддерживают электромагнитные поверхностные моды, и, таким образом, запрещается существование поверхностных плазмон-поляритонов.

Тем не менее Пендри и его коллеги доказали, что даже идеальный проводник может поддерживать связанные электромагнитные поверхностные волны, напоминающие поверхностные плазмон-поляритоны, при условии, что поверхность идеального проводника периодически гофрирована [Pendry et al., 2004]. Для реальных металлов, обладающих конечной про-

видимостью, такие поверхностные плазмон-поляритоны должны доминировать над делокализованными волнами Зоммерфельда–Зеннека. Если размер и период гофрировки гораздо меньше длины волны λ_0 , то фотонный отклик поверхности можно описать диэлектрической функцией $\varepsilon(\omega)$ *эффективной среды*. Эта функция имеет такую же форму, как для плазмы, где ω_p определяется геометрией. Таким образом, дисперсионное соотношение для поверхностной моды можно построить из геометрии поверхности, что позволяет реализовать подстройку под конкретные частоты. В модели эффективной среды процесс получения поверхностных волн объясняется с физической точки зрения так: поверхностные модуляции обеспечивают проникновение *конечного* поля в эффективный поверхностный слой подобно проникновению поля в реальные металлы, в результате чего образуются связанные поверхностные плазмон-поляритоны. Материал с субволновой структурой, обладающий эффективным фотонным откликом, называется *метаматериалом*.

Можно показать, что любая периодическая модуляция плоской поверхности идеального проводника приведет к образованию связанных поверхностных состояний. Тем не менее, мы рассмотрим только две важные геометрии: одномерный массив канавок и двумерный массив отверстий. Главным образом, будем следовать рассуждениям Гарсиа-Видаля и его коллег [Garcia-Vidal et al., 2005a] и использовать разработанную ими систему обозначений. Рассмотренный ниже подход в общем случае применим к исследованию поверхностных мод. Отметим, в приближении идеального проводника частоты поддерживаемых мод изменяются пропорционально геометрическому размеру гофрировки.

На рис. 6.4а изображен одномерный массив канавок, шириной a и глубиной h каждая, вытравленных в поверхности идеального проводника, период решетки равен d . Дисперсионное соотношение $\omega(k_x)$ поверхностной моды, постоянная распространения для которой равна $k_x = \beta$ и которая поддерживается модулированной граничной поверхностью, может быть рассчитана на основе анализа отражающей способности ТМ-поляризованной падающей волны. Ключевым моментом в этой методике служит то, что резонанс поверхностной моды соответствует расходимости коэффициента отражения: мода может существовать даже в условиях пренебрежимо малого возбуждения. Чтобы рассчитать коэффициент отражения, суммарное поле над поверхностью в области вакуума записывают в виде суммы поля падающего излучения и полей отраженных волн с порядком дифракции n , а поля внутри канавок раскладываются на основные ТЕ-моды, распространяющиеся в прямом и обратном направлении вдоль оси z , перпендикулярной к поверхности. Ограничение, накладываемое на

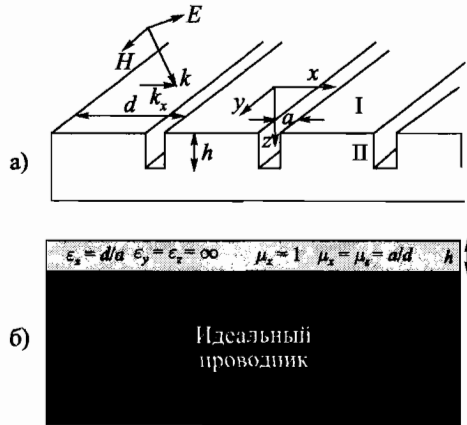


Рис. 6.4. (а) Одномерный массив канавок шириной a и глубиной h ; период решетки равен d . (б) Структура в приближении эффективной среды [Garcia-Vidal et al., 2005a]. © Institute of Physics, 2005. Используется с разрешения правообладателя

ТЕ-моду низшего порядка, справедливо для случая $\lambda_0 \gg a$, т. е. когда ширина канавки намного меньше длины волны в свободном пространстве. Приравнивая соответствующие граничные условия для электрического и магнитного полей, получаем следующие коэффициенты отражения для порядка дифракции n :

$$\rho_n = -\frac{2i \operatorname{tg}(k_0 h) S_0 S_n k_0 / k_z}{1 - i \operatorname{tg}(k_0 h) \sum_{n=-\infty}^{\infty} S_n^2 k_0 / k_z^{(n)}}, \quad (6.1)$$

где $k_0 = \omega/c$, $k_z^{(n)} = \sqrt{k_0^2 - (k_x^{(n)})^2}$, а $k_x^{(n)} = k_x + 2\pi n/d$ для порядка дифракции n . Величина S_n есть интеграл перекрывания плоской волны n -го порядка и ТЕ-моды низшего порядка, равный

$$S_n = \sqrt{\frac{a}{d}} \frac{\sin(k_x^{(n)} a/2)}{k_x^{(n)} a/2}. \quad (6.2)$$

Дисперсионное соотношение для поверхностных мод находится по особым точкам коэффициента отражения (6.1). Если положить $\lambda_0 \gg d$ так, чтобы учесть лишь зеркальное отражение с коэффициентом ρ_0 , и $k_x > k_z$,

то дисперсионное соотношение для основного состояния будет иметь вид

$$\frac{\sqrt{k_x^2 - k_0^2}}{k_0} = S_0^2 \operatorname{tg} k_0 h. \quad (6.3)$$

Это соотношение справедливо для $\lambda_0 \gg a, d$ (приближение эффективной среды).

Тот факт, что возбуждения, описываемые формулой (6.3), схожи с поверхностными плазмон-поляритонами, можно объяснить, если сравнить это дисперсионное соотношение с дисперсионным соотношением для электромагнитных волн у поверхности однородного *анизотропного* диэлектрика высотой h , расположенного поверх идеально проводящей подложки (рис. 6.4б). Если задать диэлектрическую проницаемость как $\varepsilon_x = d/a, \varepsilon_y = \varepsilon_z = \infty$, то из анализа распространения света внутри канавок следует, что соответствующая магнитная проницаемость равна $\mu_x = 1, \mu_y = \mu_z = a/d$. Исследуя аналогичным образом коэффициент отражения, находим дисперсионное соотношение для поверхностной моды в этой анизотропной структуре:

$$\frac{\sqrt{k_x^2 - k_0^2}}{k_0} = \frac{a}{d} \operatorname{tg} k_0 h. \quad (6.4)$$

Это выражение соответствует (6.3) при условии, что $k_x a \ll 1$.

На рис. 6.5 показано соотношение (6.4) при $a/d = 0,2$ и $h = d$. Из рисунка следует, что дисперсионная кривая аналогична той, которая характеризует поверхностные плазмон-поляритоны на границе диэлектрик/металл. Величина ω_p определяется из анализа геометрии поверхности: при больших k_x угловая частота $\omega \rightarrow \pi c/2h$. Анализируя с физической точки зрения образование этой поверхностной моды, заметим, что частота соответствует частоте основной моды волновода внутри канавки в пределе $a/d \rightarrow 0$. Эти резонансы обусловлены взаимодействием мод, распространяющихся в прямом и обратном направлениях по оси z . Следовательно, поверхностная мода образуется вследствие взаимодействия мод резонатора в отдельных канавках.

Конечно-разностное моделирование на временном интервале дает более точное дисперсионное соотношение и модовый профиль ложных поверхностных плазмонов. В качестве примера на рис. 6.6 показана дисперсионная кривая (а) и модовый профиль (б), т. е. распределение электрического поля $|\mathbf{E}|$ для ППП-подобной поверхностной моды в массиве канавок, вытравленных в идеальном проводнике, при $h = d = 50$ мкм и $a = 10$ мкм. Модовый профиль характеризует распределение электрического поля для

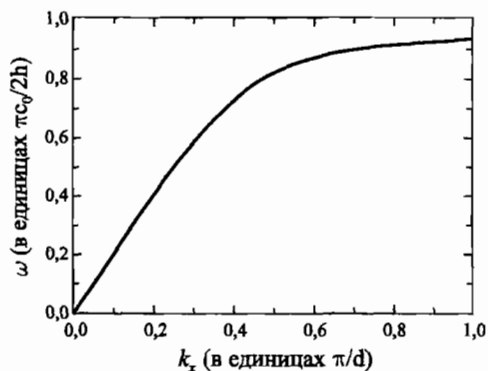


Рис. 6.5. Дисперсионное соотношение (6.4) для ППП-подобной моды в массиве канавок при $a/d = 0,5$ и $h = d$ [Garcia-Vidal et al., 2005a] с разрешения правообладателя. © Institute of Physics, 2005. Используется с разрешения правообладателя

поверхностной моды на границе зоны $k_x = \pi/d$. Отметим, что мода хорошо удерживается у поверхности. Подчеркнем также, что пока $a, d \ll \lambda_0$, рассмотренная здесь квазианалитическая теория выявляет хорошее соответствие с конечно-разностным моделированием на временных интервалах.

Гарсиа-Видаль и его коллеги провели исследование и другой структуры — квадратной решетки из отверстий со стороной a и периодом d , вытравленных в плоской пленке (рис. 6.7). Начнем с анализа полубесконечной структуры с глубиной h отверстия. Отверстия заполняются непоглощающим диэлектриком с относительной диэлектрической проницаемостью ϵ_h . По аналогии с предыдущими рассуждениями можно сказать, что поверхностные моды возникают тогда, когда коэффициент отражения ТМ-поляризованной волны, падающей на перфорированную поверхность, расходится. В пределе длинных волн $\lambda_0 \gg d$ следует учитывать лишь зеркальное отражение, а если дополнительно наложить условие $\lambda_0 \gg a$, согласно которому основная (затухающая) собственная мода внутри отверстий является доминирующей (все другие моды затухают гораздо быстрее), то коэффициент зеркального отражения ρ_0 будет равен

$$\rho_0 = \frac{k_0^2 S_0^2 - q_z k_z}{k_0^2 S_0^2 + q_z k_z}, \quad (6.5)$$

где $q_z = \sqrt{\epsilon_h k_0^2 - \pi^2/a^2}$ есть постоянная распространения для моды низшего порядка внутри отверстий, а S_0 — интеграл перекрывания с падающей

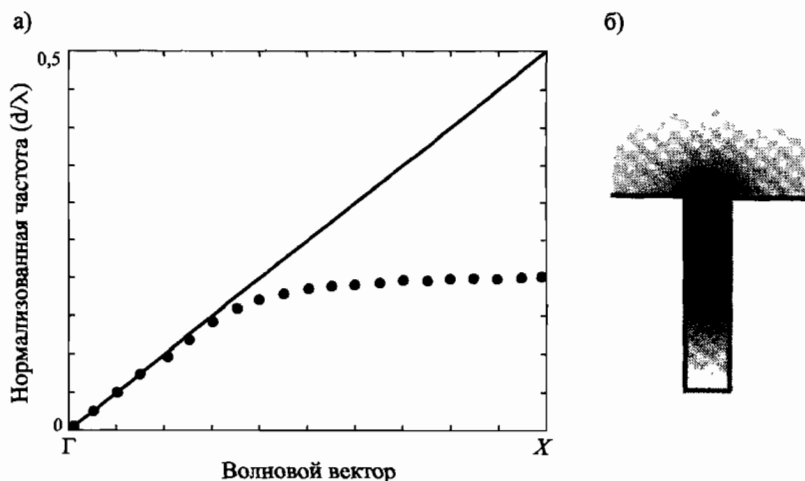


Рис. 6.6. Дисперсионное соотношение (а) и распределение электрического поля в единичной ячейке на границе зоны (б) для ППП-подобной поверхностной моды при $h = \hat{d} = 50$ мкм и $a = 10\mu$, вычисленных с помощью численного расчета во временной области

плоской волной. В явном виде имеем

$$S_0 = \frac{2\sqrt{2}a \sin(k_x a/2)}{\pi d k_x a/2}. \quad (6.6)$$

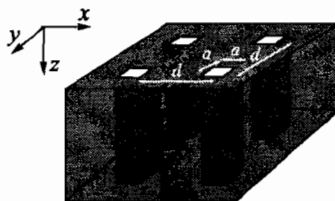


Рис. 6.7. Двумерная квадратная решетка квадратных отверстий со стороной a в полубесконечном идеальном проводнике; период решетки равен d [García-Vidal et al., 2005a]. © Institute of Physics, 2005. Используется с разрешения правообладателя

Анализируя расходимость коэффициента ρ_0 при условии $k_x > k_z$, приходим к выводу, что дисперсионное отношение для ППП-подобных связан-

ных мод имеет вид

$$\frac{\sqrt{k_x^2 - k_0^2}}{k_0} = \frac{S_0^2 k_0}{\sqrt{\pi^2/a^2 - \epsilon_h k_0^2}}. \quad (6.7)$$

Как и при обсуждении одномерного массива канавок, можно показать, что выражение (6.7) соответствует дисперсионному соотношению для однородного анизотропного полубесконечного слоя в пределе длинных волн $k_x a \ll 1$. Из анализа коэффициента отражения следует, что для этой системы справедливы равенства $\epsilon_z = \mu_z = \infty$, $\mu_x = \mu_y = S_0^2$ и

$$\epsilon_x = \epsilon_y = \frac{\epsilon_h}{S_0^2} \left(1 - \frac{\pi^2 c_0^2}{a^2 \epsilon_h \omega^2} \right), \quad (6.8)$$

последнее из которых по форме напоминает выражение (1.22) с эффективной плазменной частотой $\omega_p = \pi c / \sqrt{\epsilon_h} a$. Отметим, что эта частота является предельной для идеального металлического волновода, поперечное сечение которого есть квадрат со стороной a , заполненного диэлектриком с относительной проницаемостью ϵ_h . Ниже этой частоты электромагнитное поле экспоненциально затухает внутри отверстий. В нашем случае это соответствует условию существования поверхностного состояния.

Дисперсионное соотношение для поверхностной моды, существующей на границе раздела эффективной среды и вакуума, можно рассчитать, если подставить (6.8) в выражение (2.12), которое связывает между собой поперечные составляющие k_z волнового вектора по обе стороны границы. Получим

$$\frac{\sqrt{k_x^2 - k_0^2}}{k_0} = \frac{8a^2 k_0}{\pi^2 d^2 \sqrt{\pi^2/a^2 - \epsilon_h k_0^2}}, \quad (6.9)$$

что равняется (6.7) при $k_x a \ll 1$. На рис. 6.8 изображен график (6.9) для случая $a/d = 0,6$ и $\epsilon_h = 9$. Размер отверстий определяет степень удержания: чем меньше отверстия, тем ближе дисперсия к линии света.

Процедуру расчета (6.9) можно применить к случаю отверстий конечной глубины h , если проанализировать затухающие моды внутри отверстий, распространяющиеся как в прямом, так и обратном направлениях. В этом случае дисперсионное соотношение будет иметь вид

$$\frac{\sqrt{k_x^2 - k_0^2}}{k_0} = \frac{8a^2 k_0}{\pi^2 d^2 \sqrt{\pi^2/a^2 - \epsilon_h k_0^2}} \frac{1 - e^{-2|q_z| h}}{1 + e^{-2|q_z| h}}, \quad (6.10)$$

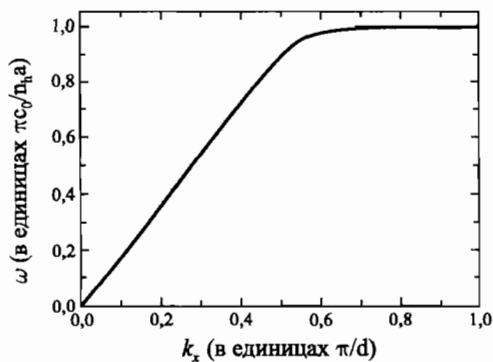


Рис. 6.8. Дисперсионное соотношение (6.9) для ППП-подобной связанной моды на границе раздела перфорированного идеального проводника с вакуумом при $a/d = 0,6$ и $\epsilon_h = 9$ [García-Vidal et al., 2005a]. © Institute of Physics, 2005. Используется с разрешения правообладателя

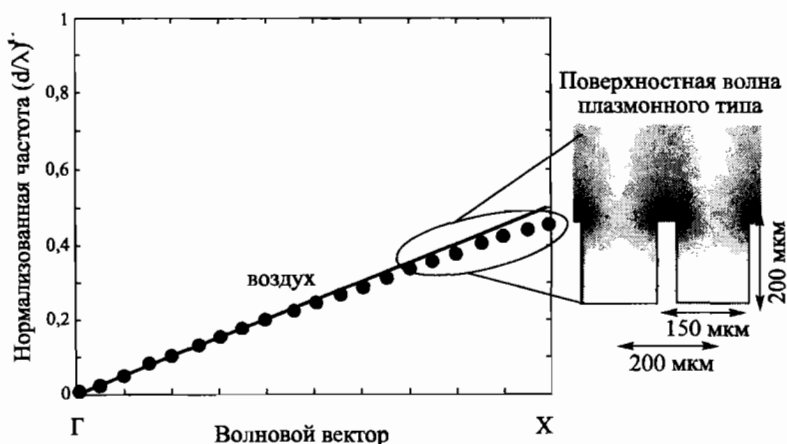


Рис. 6.9. Дисперсионное соотношение для ППП-подобной моды, которая поддерживается идеальным проводником, перфорированным квадратными отверстиями со стороной $a = 150$ мкм и глубиной $h = 200$ мкм. Отверстия упорядочены в квадратный массив с периодом $d = 200$ мкм. Также на рисунке показано распределение электрического поля на границе зоны

где, как и выше, $q_z = i\sqrt{\pi^2/a^2 - \epsilon_h k_0^2}$. Если глубина стремится к нулю ($h \rightarrow 0$), то связанная мода перестает существовать ($k_x \rightarrow k_0$), а если

глубина стремится к бесконечности ($h \rightarrow \infty$), то выражение (6.10) сводится к (6.9). Следует отметить, что к выражению (6.9) были предложены поправки для длинноволновой области дисперсионной кривой, близкой к линии света, которые учитывают эффекты нелокальности диэлектрического отклика [de Abajo and Saenz, 2005]. Однако, как и в рассмотренном выше случае одномерных канавок, до тех пор, пока оправдано приближение эффективной среды, результаты расчетов согласуются с результатами конечно-разностного моделирования во временной области.

Помимо моды низшего порядка, для отверстий конечной глубины h могут существовать локализованные поверхностные моды с низкой групповой скоростью (подобные связанным модам резонатора). Эти моды существуют при частоте, превышающей предельную частоту ω_p мод, распространяющихся внутри канавок, и обусловлены возбуждением объемных резонансов. Эти моды проникают глубоко в отверстия [Qiu, 2005].

Подчеркнем, что рассмотренная здесь теория справедлива лишь в пределе $\lambda_0 \gg d$ и $\lambda_0 \gg a$, поскольку в ней учитывается только мода низшего порядка внутри отверстий. Если размер отверстий и период решетки не удовлетворяют условиям, необходимым для приближения эффективной среды, то дисперсия должна быть рассчитана по конечно-разностной модели во временной области, учитывающей затухание мод высших порядков и потери на излучение. В качестве примера на рис. 6.9 показано дисперсионное соотношение и профиль для поверхностных мод, поддерживаемых идеальным проводником, перфорированным квадратными отверстиями со стороной $a = 150$ мкм и глубиной $h = 200$ мкм, отверстия упорядочены в квадратный массив с периодом $d = 200$ мкм.

Проектирование дисперсии поверхностного состояния, подобного плазмону, на границе раздела металл/диэлектрик методом модуляций поверхности не ограничивается одними лишь идеальными проводниками. Модуляция поверхности реальных металлов также понижает эффективную плазменную частоту ω_p за счет того, что мода глубже проникает в эффективный поверхностный слой. Это позволяет создавать структурированные поверхности с функциональными компонентами, такими как волноводы и линзы, путем варьирования показателя преломления $n_{\text{spp}} = k_x c / \omega_{\text{spp}}$ ППП-подобной моды.

Хиббенс и его коллеги экспериментально доказали, что двумерный массив отверстий поддерживает в микроволновом режиме поверхностные моды ложных плазмонов. В эксперименте они использовали периодически расположенные полые латунные трубки [Hibbins et al., 2005] (рис. 6.10а). Существование поверхностной моды подтвердилось по результатам исследования зависимости микроволнового отражения от угла. Это обозначает,

что мы можем исследовать дисперсионное соотношение поверхностных мод, анализируя зависимость падений отражения от угла (см. вкладку на рис. 6.10). Дополнительный одномерный слой цилиндрических стержней, расположенных на расстоянии $2d$ друг от друга, обеспечивает дифракционное связывание поверхностных мод и их рассеяние в излучательную область. Так, например, из-за рассеяния при $k_x = \pi/2d$ дисперсионная кривая, изображенная на рис. 6.10b, отличается от канонической формы (6.10). Очевиден поверхностный характер наблюдаемой моды (она лежит ниже линии света первого порядка, соответствующей массиву стержней).

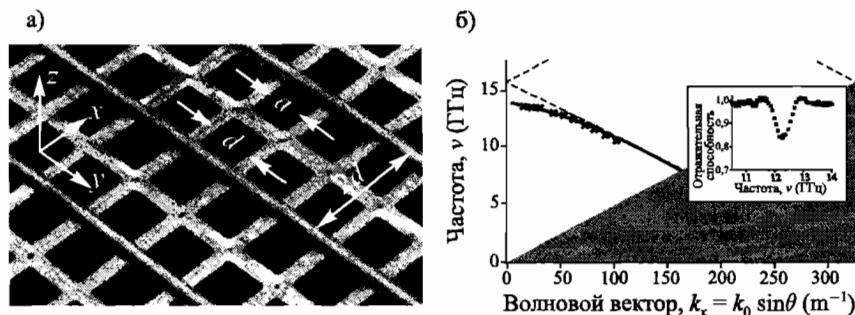


Рис. 6.10. (а) Фотоснимок двумерного массива полых латунных трубок, поперечное сечение которых имеет форму квадрата со стороной $d = 9,525$ мм; внутренний размер трубок равен $a = 6,960$ мм, а их глубина — $h = 45$ мм. Поверх этого массива расположен одномерный массив цилиндрических стержней, который осуществляет дифракционное связывание и отсекает поверхностных мод. (б) Дисперсионное соотношение для поверхностной моды найдено по зависимости отражения от угла падения (см. вкладку) [Hibbins et al., 2005]. © AAAS, 2005. Используется с разрешения правообладателя

Отметим, что, помимо роли плоского проводника, ложные ППП выполняют еще одну важную роль: они участвуют в усилении пропускания сквозь массивы отверстий, если размер отверстий меньше критического значения для распространяющейся моды [Hibbins et al., 2006]. Более подробно поговорим об этом в главе 8.

6.3. Поверхностные фонон-поляритоны

Мы знаем, что при низких частотах высокая локализация электромагнитного поля вблизи металлических структур может быть достигнута лишь тогда, когда их поверхность гофрирована. Большую роль при этом играют

ложные плазмоны. Использование проводников с более низкими плотностями носителей заряда, таких как легированные полупроводники, может обеспечить субволновое удержание даже вблизи плоских поверхностей. Тем не менее из-за свойственных им поглощающих свойств происходит сильное затухание. В этом разделе мы кратко рассмотрим третью интересную возможность, позволяющую удерживать и усиливать поля при частотах средней инфракрасной области спектра, — *поверхностные фонон-поляритоны*.

Поверхностные фонон-поляритоны возникают вследствие взаимодействия электромагнитного поля с колебаниями полярных диэлектриков на решетке при частотах инфракрасной области спектра. Физика этих возбуждений не отличается от физики, лежащей в основе распространяющихся и локализованных поверхностных плазмонов, поэтому она также определяется формулами, выведенными в главах 2 и 5.

Приведем два примера локализованных и распространяющихся поверхностных фононов. На рис. 6.11 сравниваются результаты расчета усиления электрического поля при резонансной частоте Фрелиха для трех сфер диаметром 10 нм: одна сфера состоит из SiC, две другие — из благородного металла (золото, серебро) [Hillenbrand et al., 2002]. Мы видим, что локализованный фононный резонанс, расположенный в окрестности длины волны $\lambda \approx 10$ мкм, значительно сильнее, чем резонанс локализованных плазмонов в благородных металлах. Это объясняется более низким затуханием: при резонансной частоте величина $\text{Im}[\varepsilon]$ меньше для карбида кремния (SiC), чем для золота или серебра.

Таким образом, фотоника с использованием фононов на частотах средней инфракрасной области спектра весьма перспективна с точки зрения субволновой локализации энергии точно так же, как плазмоника при частотах видимой и ближней инфракрасной области спектра, но с потенциально меньшим затуханием энергии в волноводах и более сильным удержанием поля в резонаторных структурах. Возьмем в качестве примера результаты зондирования локализованного резонанса. На рис. 6.12 показаны топографическое и ближнепольное оптическое изображения тонкой карбидокремниевой пленки, окруженной толстой золотой пленкой, которая зондируется с помощью рассеяния излучения средней инфракрасной области спектра, идущего от острого платинового острия, сканирующего структуру [Hillenbrand et al., 2002]. Из рисунка следует, что интенсивность карбидокремниевой области сильно зависит от длины волны световых лучей в силу резонансного взаимодействия в ближнем поле между структурой и наконечником зонда [Render et al., 2005].

Рассмотренная методика позволяет не только исследовать резонансы локализованных фононов, но и получать ближнепольные оптические изоб-

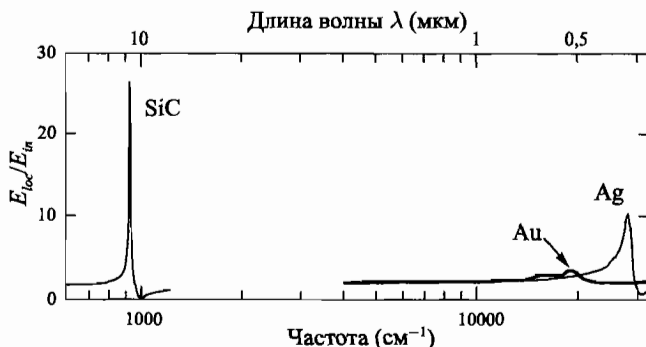


Рис. 6.11. Рассчитанное усиление поля в случае поляризуемости карбидокремниевой сферы диаметром 10 нм при частоте Фрелиха, определяемой по формуле (5.8), в сравнении с усилением поля для сфер, состоящих из золота и серебра. Рисунок взят из Macmillan Publishers Ltd: Nature [Hillenbrand et al., 2002] с разрешения правообладателя, © 2002

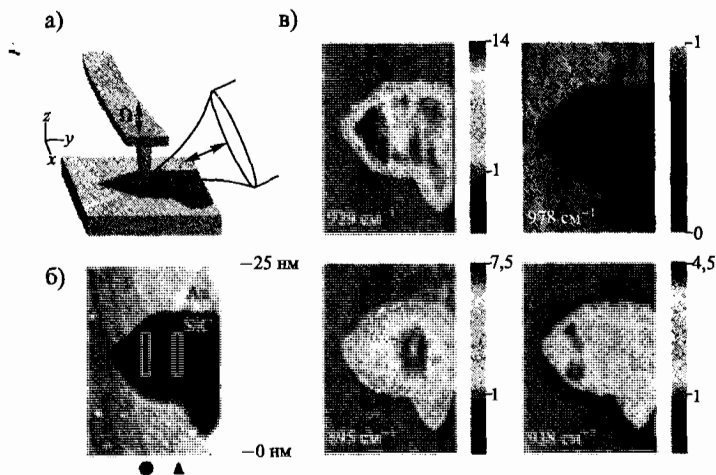


Рис. 6.12. Экспериментальная установка (а) и изображения (б, в) карбидокремниевой структуры, окруженной пленкой золота, полученные с помощью безапертурного ближнепольного оптического микроскопа, работающего при частотах средней инфракрасной области спектра. На рисунке (б) изображен топографический снимок, а на рисунке (в) — ближнепольные оптические изображения. Сильная зависимость оптического контраста центральной карбидокремниевой структуры от длины волны обусловлена резонансным взаимодействием с зондирующим острием при 929 см^{-1} . Рисунок взят из Macmillan Publishers Ltd: Nature [Hillenbrand et al., 2002] с разрешения правообладателя, © 2002

ражения поверхностных фонов-поляритонов, распространяющихся на карбидокремниевой пленке [Huber et al., 2005]. Хубер и его коллеги провели эксперимент с возбуждением распространяющихся поверхностных волн, используя метод связывания с лучом в свободном пространстве на границе тонкого слоя золота (рис. 6.13а). Рассеивающийся хвост поверхностных волн взаимодействует с наконечником зонда, в результате чего происходит рассеяние в дальнее поле и становление интерференционной картины (рис. 6.13б).

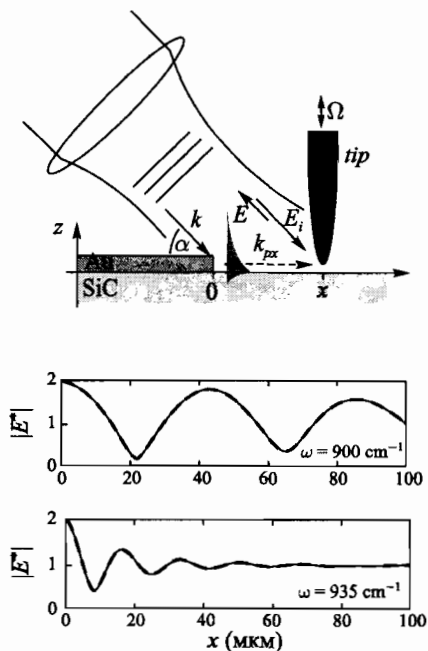


Рис. 6.13. (а) Экспериментальная установка для получения ближнеполевых изображений поверхностных фонов-поляритонов, распространяющихся по поверхности карбидокремниевой пленки и возбуждаемых внеосевым вводом излучения. (б) Результат расчета зависимости интерференционной картины от длины волны возбуждения [Huber et al., 2005]. © American Institute of Physics, 2005. Используется с разрешения правообладателя

Технология фазочувствительного детектирования помогла определить коэффициент распространения β и длину затухания L в экспериментальном исследовании зависимости периодичности в контрасте интенсивности по-

лученных снимков от длины световой волны. Показательные снимки приведены на рис. 6.14. В рамках этого исследования была достигнута дальность распространения $30 \text{ мкм} \leq L \leq 200 \text{ мкм}$, варьирующаяся в зависимости от степени удержания. Впоследствии было доказано, что дальность распространения можно подгонять, несколько изменяя топографию поверхности [Ocelic and Hillenbrand, 2004].

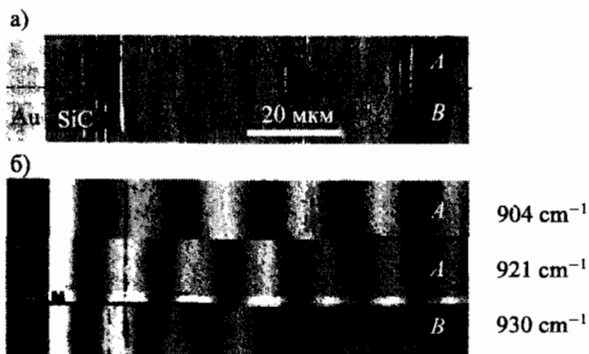


Рис. 6.14. Топографическое (а) и ближнепольное оптическое (б) изображения распространяющихся поверхностных фонон-поляритонов, полученные с помощью установки на рис. 6.13 [Hillenbrand et al., 2005]. © American Institute of Physics, 2005. Используется с разрешения правообладателя

По результатам приведенных выше исследований можно предположить, что концепции, заимствованные из плазмоники на частотах видимой области спектра, могут быть перенесены для исследований средней инфракрасной области спектра и фононных возбуждений.

Часть II

Приложения

Введение

С использованием представленных фундаментальных знаний в первой части книги, во второй части мы познакомимся с пятью основными областями исследования в плазмонике. Начнем с обзора различных способов осуществления контроля над распространением поверхностных плазмон-поляритонов. Плазмонные волноводы являются перспективным решением с точки зрения новой высокоинтегрированной фотонной инфраструктуры, которая может служить дополнением к электронным устройствам. Контроль над пропусканием света через апертуры размером меньше длины волны путем возбуждения плазмонов также представляет собой интересную область спровоцировавшую огромное количество исследований с момента первого описания усиленного пропускания света через апертурные решетки в 1998 г. В следующих главах будет показано, как высоколокализованные поля вокруг металлических наноструктур могут привести к усилению излучения помещенных в эти «горячие» точки молекул, а также различные способы для спектроскопии локализованных мод. Эти главы также включают поверхностное описание биологического считывания и маркировки с использованием поверхностных плазмон-поляритонов. Эта часть завершается кратким ознакомлением с полями металлических метаматериалов, искусственных контрукций со структурой меньше длины волны, демонстрирующих ранее неизвестный оптический феномен: искусственный магнетизм и отрицательный коэффициент преломления.

Введение

С использованием представленных фундаментальных знаний в первой части книги, во второй части мы познакомимся с пятью основными областями исследования в плазмонике. Начнем с обзора различных способов осуществления контроля над распространением поверхностных плазмон-поляритонов. Плазмонные волноводы являются перспективным решением с точки зрения новой высокоинтегрированной фотонной инфраструктуры, которая может служить дополнением к электронным устройствам. Контроль над пропусканием света через апертуры размером меньше длины волны путем возбуждения плазмонов также представляет собой интересную область спровоцировавшую огромное количество исследований с момента первого описания усиленного пропускания света через апертурные решетки в 1998 г. В следующих главах будет показано, как высоколокализованные поля вокруг металлических наноструктур могут привести к усилению излучения помещенных в эти «горячие» точки молекул, а также различные способы для спектроскопии локализованных мод. Эти главы также включают поверхностное описание биологического считывания и маркировки с использованием поверхностных плазмон-поляритонов. Эта часть завершается кратким ознакомлением с полями металлических метаматериалов, искусственных конструкций со структурой меньше длины волны, демонстрирующих ранее неизвестный оптический феномен: искусственный магнетизм и отрицательный коэффициент преломления.

ГЛАВА 7

Плазмонные волноводы

В главе 2 мы рассмотрели основные физические принципы существования поверхностных плазмон-поляритонов. Определим способы регулирования их распространения в волноводах. Чтобы при решении этой задачи добиться оптимального баланса между удержанием полей и энергетическими потерями, нужно тщательно выбрать геометрию с учетом масштаба расстояний, на которые необходимо передать энергию. К примеру, тонкие металлические пластины, помещенные в однородную диэлектрическую среду, могут проводить поверхностные плазмон-поляритоны на расстояния в несколько сантиметров с частотами из ближней инфракрасной области спектра. При этом, однако, соответствующие поля очень плохо удерживаются в перпендикулярном направлении. Зато при использовании металлических нанопроводов или волноводов из наночастиц локализация поперечной моды может быть ниже дифракционного предела в окружающей среде, но зато с большими потерями на затухание, поэтому дальность распространения не превышает нескольких микрометров.

Маршрутизация поверхностных плазмон-поляритонов на плоских границах раздела может достигаться за счет локального изменения их дисперсионных соотношений с помощью поверхностной модуляции, которую мы рассмотрим в первых двух разделах главы. Далее перейдем к изучению поперечного удержания полей в металлических полосковых и проволочных волноводах, уделив особое внимание вопросу распространения поверхностных плазмон-поляритонов в конических структурах. Инверсные металлические слоистые структуры, например гетероструктуры металл/диэлектрик/металл, также являются перспективными в плане эффективного распространения волн, так как обеспечивают хорошее удержание и приемлемую дальность распространения, особенно в геометриях с V-образными каналами. В конце главы мы покажем, что в качестве волноводных механизмов могут, кроме того, использоваться возбуждения локализованных плазмонов в металлических наночастицах, так как в линейных цепочках из частиц передача энергии осуществляется за счет ближних связей между соседними частицами. Наконец, в завершение главы рассмотрим

практические способы того, как можно преодолеть затухание, используя в составе волноводов оптически усиливающие среды.

7.1. Планарные элементы для управления распространением поверхностных плазмон-поляритонов

Направление движения поверхностных плазмон-поляритонов на границе раздела металлической пленки и диэлектрической подложки (воздуха или другого диэлектрика) можно регулировать путем рассеяния распространяющихся двумерных волн на локально созданных дефектах. Рассеиватели можно создать с помощью модуляций поверхности с использованием наноразмерных частицеподобных структур или с помощью отверстий в пленке. Регулируя положение этих модуляций или отверстий, можно сгенерировать функциональные элементы, такие как брэгговские зеркала, которые будут отражать поверхностные плазмон-поляритоны [Ditlbacher et al., 2002b], или фокусирующие элементы, которые будут усиливать поперечное удержание [Yin et al., 2005; Liu et al., 2005]. Таким образом, создаются плоские двумерные фотонные инфраструктуры, в которых распространяются поверхностные плазмон-поляритоны.

Приведем простой показательный пример регулирования движения поверхностных плазмон-поляритонов за счет рассеяния волн на модуляциях поверхности. Этот эксперимент провели Дитлбахер и его коллеги [Ditlbacher et al., 2005b]. С помощью электронно-лучевой литографии и химического осаждения из паровой среды на кремниевой подложке были созданы кремниевые наноструктуры, такие как частицы и провода, высотой 70 нм. Затем модулированную пленку покрыли слоем серебра толщиной 70 нм (рис. 7.2). Для возбуждения поверхностных плазмон-поляритонов использовался метод фазовой синхронизации, которая достигалась рассеянием пучка возбуждения (в рассматриваемом случае лучом титан-сапфирового лазера с $\lambda_0 = 750$ нм), на дефекте в форме нанопровода (см. главу 3). Траектория распространения поверхностных плазмон-поляритонов отслеживалась за счет пленки, покрытой полимерным слоем, содержащим флуоресцентные красители (см. главу 4). Этот способ позволил оценить $1/e$ -дальность распространения поверхностных плазмон-поляритонов на пленке серебро/полимер с точностью до 10 мкм.

На рис. 7.2 показан брэгговский отражатель, созданный по этому принципу. Он состоит из параллельных линий частиц диаметром 140 нм. Расстояние между соседними линиями, равное 350 нм (рис. 7.2а), удовлетворяет условию Брэгга для вхождения поверхностных плазмон-поляритонов в массив под углом 60° . В результате волна ППП зеркально отражается

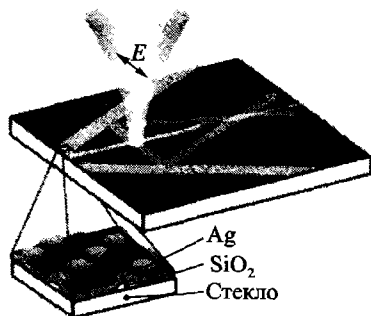


Рис. 7.1. Регулирование движения поверхностных плазмон-поляритонов на плоской серебряной пленке с помощью поверхностных модуляций. Роль локального источника поверхностных плазмон-поляритонов играет лазерный луч сфокусированный на дефекте нанопровода или наночастицы для фазовой синхронизации. Микрограф показывает, что брэгговский отражатель состоит из линий равномерно распределенных частицеподобных модуляций (рис. 7.2) [Ditlbacher et al., 2002b]. © American Institute of Physics, 2002. Используется с разрешения правообладателя

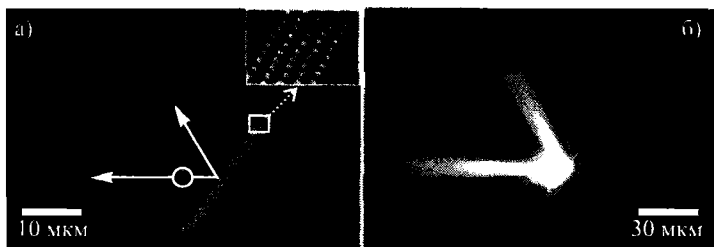


Рис. 7.2. (а) Полученное с помощью сканирующего электронного микроскопа изображение брэгговского отражателя поверхностных плазмон-поляритонов, который состоит из упорядоченных массивов частиц на подложке из металлической пленки. (б) Распространение поверхностных плазмон-поляритонов, зафиксированное в процессе наблюдения за излучением флуоресцирующего верхнего слоя [Ditlbacher et al., 2002b]. © American Institute of Physics, 2002. Используется с разрешения правообладателя

(флуоресцентное изображение показано на рис. 7.2б). В этом случае коэффициент отражения брэгговского зеркала, состоящего из пяти линий, оценивается в 90 %, остальные 10 % рассеиваются за пределы плоскости в виде излучения. Этот эксперимент подтвердил, что плоские пассивные оптические

ские элементы, используемые для маршрутизации поверхностных плазмон-поляритонов, сделать достаточно просто. В следующем разделе мы покажем, что поперечную протяженность поверхностных плазмон-поляритонов также можно регулировать. Для этого необходимо перейти от брэгговских отражателей к фотонным кристаллам на поверхностных плазмонах, которые дают запрещенные для распространения волн зоны в желаемых частотных диапазонах.

Другой способ регулировать распространение поверхностных плазмон-поляритонов на одиночной границе раздела металла и диэлектрика заключается в пространственном изменении дисперсии ППП и, следовательно, фазовой скорости. Это изменение достигается размещением на пленке диэлектрических наноструктур [Hohenau et al., 2005b] по аналогии с традиционной маршрутизацией лучей в свободном пространстве диэлектрическими элементами, такими как линзы. На рис. 7.3 изображены рассчитанные дисперсионные соотношения для поверхностных плазмон-поляритонов в многослойной системе стекло/золото/покрытие как для s -мод (магнитные поля на обеих границах раздела металла с диэлектриками совпадают по фазе), так и для a -мод (магнитные поля на обеих границах раздела металла с диэлектриками не совпадают по фазе) для различных значений диэлектрической постоянной ϵ_3 верхнего слоя (покрытия). Очевидно, что рост значения ϵ_3 ведет к увеличению волнового вектора ППП (см. главу 2). Это обозначает, что фазовую скорость распространяющихся волн можно локально уменьшить, если поверх металлической пленки нанести диэлектрические структуры. Изменяя геометрическую форму диэлектрических покрытий и, как следствие, областей сниженной фазовой скорости, мы можем создать оптические компоненты (линзы или волноводы) для распространения поверхностных плазмон-поляритонов. При этом, однако, затухание будет сильнее из-за того, что мода локализуется вблизи металлической поверхности.

По рис. 7.4 видно, что согласно этой концепции фокусирование (верхний ряд) и преломление/отражение (нижний ряд) поверхностных плазмон-поляритонов достигается путем нанесения на золотую пленку цилиндрических или треугольных частиц, аналогичных трехмерным оптическим элементам в традиционной оптике свободного пространства.

Хохенау и его коллеги возбуждали поверхностные плазмон-поляритоны с помощью масляно-иммерсионного объектива и наблюдали за их распространением по излучению дифракционных потерь (рис. 7.4a, b, d, e) и с помощью ближнепольного оптического микроскопа (рис. 7.4c, f). Согласно этой же концепции, мы можем возбуждать аналогичные поверхностные плазмон-поляритоны в диэлектрических волноводах путем создания одно-

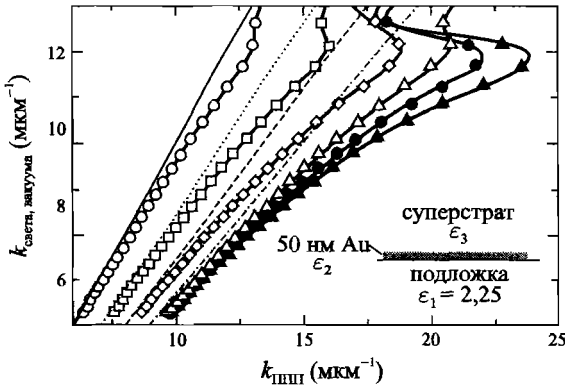


Рис. 7.3. Рассчитанные дисперсионные соотношения для поверхностных плазмон-поляритонов в трехслойной системе стекло/золото/покрытие для s -моды (полые символы) и a -моды (заштрихованные символы). Увеличение значения диэлектрической постоянной ϵ_3 верхнего слоя (покрытия) с $\epsilon_3 = 1$ (кружки) до $\epsilon_3 = 2,25$ (треугольники) обуславливает рост коэффициента распространения и, как следствие, уменьшение фазовой скорости поверхностных плазмон-поляритонов. При $\epsilon_1 = \epsilon_3$ эти две моды развиваются в симметричную (s) или асимметричную (a) моду [Hohenau et al., 2005b] с разрешения Американского оптического общества

мерных областей пониженной фазовой скорости, что и было подтверждено экспериментально в опыте с одномерными полимерными наноструктурами, расположенными поверх слоя золота [Smolyaninov et al., 2005].

В конце раздела расскажем о двух недавних исследованиях, посвященных фокусированию, с применением металлической пленки, в которой проделаны отверстия и каналы. Такая пленка поддерживает распространение поверхностных плазмон-поляритонов. На рис. 7.5 показано, как усиливающая интерференция между поверхностными плазмон-поляритонами, которые локально возбуждаются освещением массива из девятнадцати отверстий, диаметром 200 нм каждое, в серебряной пленке толщиной 50 нм (массив имеет форму четверти круга) дает узкое сфокусированное пятно в центре окружности [Yin et al., 2005]. В рамках своего опыта Инь и его коллеги применяли фокусирующий элемент для связывания поверхностных плазмон-поляритонов в полосковый волновод толщиной 250 нм (см. рис. 7.5а, б).

Возбуждение поверхностных плазмон-поляритонов с последующим их фокусированием можно также осуществить с помощью металлической пленки, в которой проделаны субволновые щели, имеющие форму окруж-

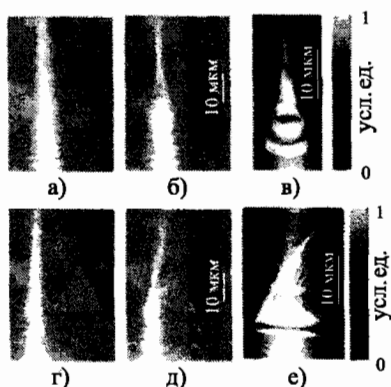


Рис. 7.4. Фокусирование (верхний ряд) или отражение и преломление (нижний ряд) поверхностных плазмон-поляритонов с помощью цилиндрической или треугольной диэлектрической структуры толщиной 40 нм, расположенной поверх золотой пленки. Излучение дифракционных потерь (а, б, д, е) и оптическое ближнее поле (е, ф) свидетельствуют об изменении распространения поверхностных плазмон-поляритонов при их столкновении с диэлектрическими структурами (б, с, е, ф) [Hohenau et al., 2005b]. © Optical Society of America, 2005. Используется с разрешения правообладателя

ности или эллипса [Liu et al., 2005]. В этом случае края круговой щели играют роль точечного источника поверхностных плазмон-поляритонов, которые возбуждаются освещением щелевой апертуры в тех областях, где электрическое поле возбуждения поляризуется перпендикулярно щели. Возбужденные поверхностные плазмон-поляритоны движутся к центру окружности и фокусируются там. Нерезонансный характер этого процесса делает предложенную схему подходящей для фокусирования поверхностных плазмон-поляритонов, которые возбуждаются с разными частотами видимой области спектра, правда, эффективность фокусирования мала. На рис. 7.6а изображены поверхностные плазмон-поляритоны, которые фокусируются с помощью круговой щели радиусом 14 мкм и шириной 280 нм; щель проделана в серебряной пленке толщиной 150 нм. Картина возбуждения в ближнем поле линейно поляризованным светом была зафиксирована с помощью оптического микроскопа. По рисунку видно, что источниками поверхностных плазмон-поляритонов являются лишь две противоположные области окружности, в которых электрическое поле поляризуется перпендикулярно щели. Освещение неполяризованным светом ведет к возбуждению поверхностных плазмон-поляритонов по всему периметру отверстия, как показано на рис. 7.6 для щели в алюминиевой пленке толщиной

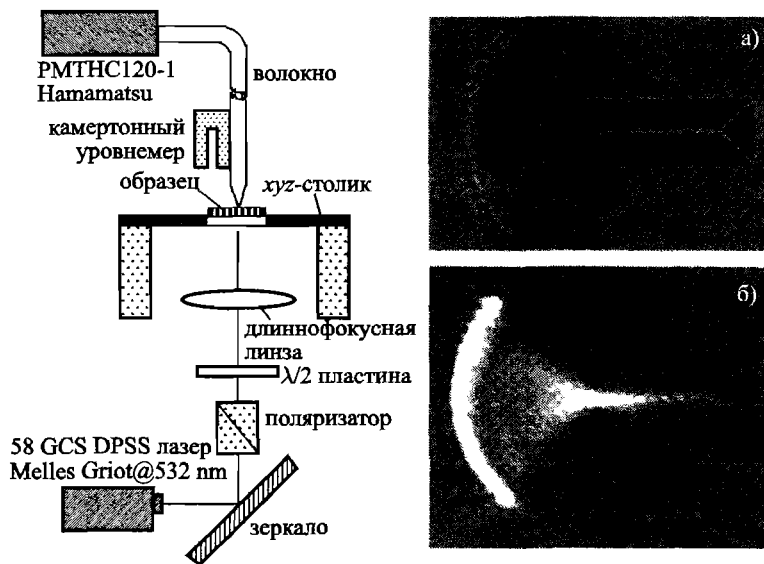


Рис. 7.5. Экспериментальная установка для возбуждения и получения ближнепольных ИК-изображений поверхностных плазмон-поляритонов, фокусирующихся на перфорированной металлической пленке (слева). (а) Полученное с помощью сканирующего электронного микроскопа изображение фокусирующего массива нанодоверстий, который собирает возбужденные поверхностные плазмон-поляритоны в серебряный полосковый проводник толщиной 250 нм. (б) То же изображение, полученное средствами оптики ближнего поля [Yin et al., 2005]. © American Chemical Society, 2005. Используется с разрешения правообладателя

70 нм, имеющей форму эллипса с осями 4 мкм и 2 мкм. Ближнепольное изображение картины возбуждения получено в этом случае экспонированием фоторезистного слоя.

Отметим, что комбинируя функциональные элементы, рассмотренные в этом разделе, можно создать планарные фотонные цепи, работающие на оптических частотах или частотах ближней инфракрасной области и обеспечивающие дальность распространения не более 100 мкм.

7.2. Структура запрещенных зон для поверхностных плазмон-поляритонов

Концепцию усиливающего отражения поверхностных плазмон-поляритонов на металлической пленке брэгговскими отражателями, созданными

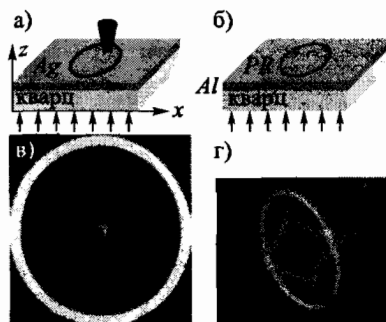


Рис. 7.6. Возбуждение и фокусирование поверхностных плазмон-поляритонов путем освещения круговых или эллиптических щелей в металлической пленке. Наблюдение за интенсивностью поверхностных плазмон-поляритонов осуществляется с помощью ближнепольной микроскопии (а, с) или экспонированием фоторезистного верхнего слоя (б, d) [Liu et al., 2005]. © American Chemical Society, 2005. Используется с разрешения правообладателя

ми при помощи периодически расположенных металлических наночастиц (рис. 7.1 и 7.2), можно применить к созданию зон, запрещенных для распространения поверхностных плазмон-поляритонов, если поверх металлической пленки расположить регулярные решетки металлических наночастиц. Божевольный и его коллеги показали, что треугольная сетка золотых точек на тонкой золотой пленке дает запрещенную зону для распространения поверхностных плазмон-поляритонов [Bozhevolnyi et al., 2001]. На рис. 7.7 изображен пример такой структуры. Она состоит из треугольной сетки золотых точек, нанесенных на золотую пленку толщиной 40 нм. Период решетки составляет 900 нм; каждая точка имеет ширину 378 нм и высоту 100 нм. Как следствие, в окне дальней связи образовалась запрещенная зона (длины волны порядка $\lambda = 1,5$ мкм) [Marguart et al., 2005]. С помощью ближнепольной оптической микроскопии можно наблюдать, как поверхностные плазмон-поляритоны (возбуждаемые призмным вводом излучения на плоских участках пленки) проникают в эту структуру. На рисунках (б) и (с) показаны ближнепольные изображения для двух разных длин волны. Таким образом, для заданного направления распространения поверхностных плазмон-поляритонов можно определить запрещенную зону. Для этого необходимо найти дальность проникновения поверхностных волн в решеточную структуру.

Применение этой концепции в производстве волноводов очевидно: создавая в треугольной решетке точки локальных линейных дефектов шири-

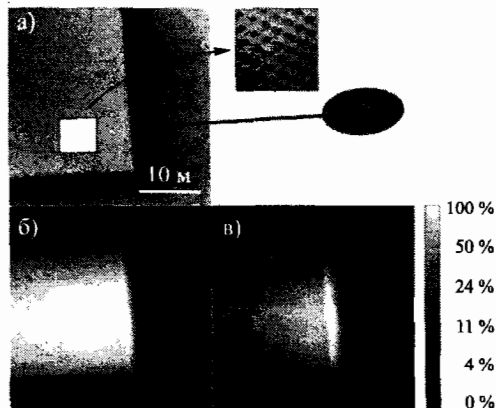


Рис. 7.7. Топографическое изображение (а) и ближнепольные ИК-изображения (б, с) структуры запрещенной зоны (площадью $35 \times 35 \mu\text{m}^2$) для поверхностных плазмон-поляритонов, которая состоит из треугольной решетки (с периодом 900 нм) золотых точек шириной 378 нм и высотой 100 нм, нанесенных на золотую пленку толщиной 40 нм. Поверхностные плазмон-поляритоны, возбуждаемые за счет призмного ввода излучения волн длиной 1550 нм (б) или 1600 нм (в), входят в решетку справа в направлении ГК. Они существенно ослабляются в том случае, если их частота находится внутри запрещенной зоны (с) [Marguart et al., 2005]. © Optical Society of America, 2005. Используется с разрешения правообладателя

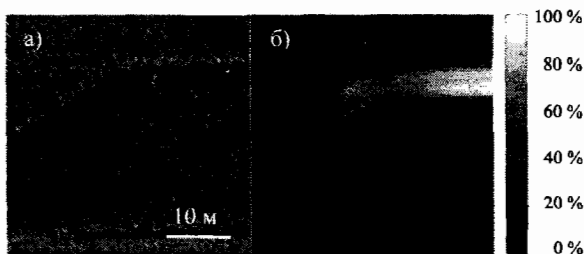


Рис. 7.8. Топографическое (а) и ближнепольное ИК-изображение (б) канального дефектного волновода в треугольной решетке с периодом 950 нм, состоящей из золотых точек шириной 438 нм и высотой 80 нм, нанесенных поверх золотой пленки. Поверхностные плазмон-поляритоны, возбуждаемые при $\lambda_0 = 1515$ нм, входят в канал справа и распространяются по нему [Marguart et al., 2005]. © Optical Society of America, 2005. Используется с разрешения правообладателя

ной в несколько микрон, можно добиться того, что поверхностные плазмон-поляритоны будут пространственно удерживаться в канальных волноводах. Эта концепция схожа с теми, которые используются в планарных диэлектрических фотонных кристаллах. На рис. 7.8 показано ближнепольное оптическое изображение поверхностных плазмон-поляритонов, возбуждаемых при длине волны $\lambda_0 = 1550$ нм методом призмного ввода излучения и распространяющихся внутри канального дефектного волновода в треугольной решетке золотых точек с периодом 950 нм. Заметим, что в этом случае часть поверхностных плазмон-поляритонов, движущихся по каналу, рассеивается в окружающую решетку на перегибах канала, поскольку запрещенные зоны для разных направлений в неприводимой зоне Бриллюэна не перекрываются. Волноводы, основанные на этом принципе, обеспечивают пространственное удержание порядка длины волны в вакууме (удержание зависит от ширины канала), поэтому $1/e$ длины затухания распространяющихся по каналу волн ППП сравнимо с длиной затухания в случае немодулированной плоской границы раздела системы металл/диэлектрик.

~

7.3. Распространение поверхностных плазмон-поляритонов вдоль металлических полос

Перейдем к рассмотрению многослойных систем и их использованию в качестве волноводов. В этом разделе мы опишем простую концепцию волноводного распространения поверхностных плазмон-поляритонов с регулируемым поперечным удержанием. Наши рассуждения будут основаны на рассмотрении многослойной системы диэлектрик/металл/диэлектрик, речь о которой шла в главе 2; напомним, что эта система состоит из тонкой металлической полосы, заключенной между двумя толстыми диэлектрическими слоями (см. рис. 2.5). Мы знаем, что при достаточно тонком металлическом слое толщиной t взаимодействия между поверхностными плазмон-поляритонами на нижней и верхней границах раздела сред ведут к образованию связанных мод. Для симметричной системы с одинаковыми диэлектрическими слоями (подложка и покрытие) моды обладают хорошей симметрией, причем нечетная мода (определяемая так же, как в главе 2) выявляет одно интересное свойство: с уменьшением толщины металла значительно снижается коэффициент затухания волн. Ранее говорилось, что этот факт обуславливается ослаблением удержания моды по мере ее развития в ТЕМ-моду, которая распространяется в однородной диэлектрической среде при $t \rightarrow 0$.

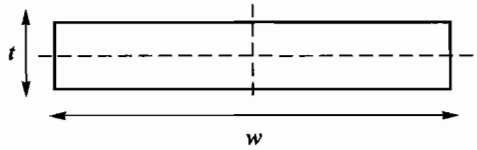


Рис. 7.9. Поперечное сечение металлического полоскового волновода конечной ширины. Штрихом обозначены плоскости симметрии

В главе 2 мы рассматривали исключительно многослойные структуры бесконечной ширины w . Теперь проведем исследование связанных мод ППП, распространяющихся вдоль металлических полос конечной ширины. Ограничимся изучением таких волноводов, поперечное сечение которых удовлетворяет условию $w/t \gg 1$, где лишь вертикальный размер t меньше длины волны (см. схему на рис. 7.9). В следующем разделе мы поговорим о движении волн по нанопроводам при дополнительном условии $w < \lambda_0$. Прежде чем рассматривать случай, в котором металлическая полоса находится поверх диэлектрической подложки, а в качестве верхнего слоя выступает воздух, обратимся к одному важному случаю, в котором металлические полосы заключены в однородную диэлектрическую среду. Из главы 2 мы знаем, что дальнедействующая мода ППП может существовать в бесконечно широких структурах. Эту моду также поддерживают полосы определенной конечной ширины w , поэтому рассматриваемая геометрия широко используется в производстве волноводов.

Берини провел теоретическое исследование связанных мод, поддерживаемых тонкой металлической полосой, заключенной в однородную диэлектрическую среду [Berini, 2000]. Помимо двух основных мод с противоположными симметриями, которые по своей природе во многом схожи с двумя связанными модами в многослойной системе бесконечной ширины, Берини тщательно изучил другие связанные моды более высоких порядков, которые также поддерживаются этой структурой. Связанные моды обозначаются двумя символами, описывающими симметрию составляющей электрического поля, перпендикулярной к продольным краям полосы, относительно двух плоскостей симметрии полоски (штрихованные линии на рис. 7.9), и числом узлов поля, встречающихся по ширине полосы. В такой системе обозначений связанная мода низшего порядка записывается как ss_b^0 . Эта запись напоминает условное обозначение нечетной связанной моды в симметричной структуре бесконечной ширины (употребление s_b вместо a_b обусловлено различиями в классификации симметрий: либо относительно составляющей электрического поля, перпендикулярной к продольным краям полосы, как в нашем случае, либо относительно составля-

ющей электрического поля, параллельной направлению распространения, как в главе 2).

На рис. 7.10 показаны результаты расчета дисперсионных соотношений для первых четырех мод, поддерживаемых серебряной полоской шириной $w = 1$ мкм и толщиной t , расположенной в симметричной диэлектрической среде с диэлектрической постоянной $\varepsilon = 4$. В этом эксперименте возбуждение осуществлялось с длиной волны в вакууме $\lambda_0 = 633$ нм. Также на рисунке для сравнения показаны результаты соответствующего расчета для двух мод s_b и a_b , которые поддерживаются многослойной геометрией бесконечной ширины. На рис. 7.10а показано изменение действительной части постоянной распространения β (нормированной к объему свободного пространства β_0), а на рис. 7.10б показано изменение мнимой части коэффициента β , которое характеризует затухание при движении связанных волн ППП. Мы не будем более подробно анализировать развитие мод во времени, ограничимся описанием основной моды ss_0^0 . Эта мода развивается аналогично дальнедействующей моде s_b , которая поддерживается бесконечной структурой. Для этой моды нет порогового значения толщины: ее затухание резко ослабевает (в десятки раз) с уменьшением толщины полоски. Как и в случае пластины бесконечной ширины [Sarid, 1981], эта мода называется *дальнедействующей* модой ППП, поддерживаемой полосковым волноводом.

Из рассуждений, касающихся распространения дальнедействующей моды в системе бесконечной ширины (см. главу 2), мы заключаем, что ослабление затухания с уменьшением толщины пленки сопровождается таким же резким ослаблением удержания, и при стремлении толщины полоски к нулю мода развивается в ТЕМ-моду среды: когда удержание (определяемое отношением мощности, передаваемой вдоль полоски, к общей мощности моды) ослабевает (а это происходит по мере уменьшения толщины полоски), мода вытягивается в диэлектрическую окружающую среду на расстояние в несколько длин волны. Потери удержания особенно велики для полос, ширина которых меньше λ_0 . Таким образом, с точки зрения сильного удержания и высокой интеграционной плотности волноводы диэлектрик/металл/диэлектрик не являются предпочтительными [Zia et al., 2005c]. Рекомендуем читателям прочесть оригинальную публикацию [Berini, 2000], в которой детально анализируется развитие дальнедействующей моды с изменением w , диэлектрической постоянной среды и длины волны возбуждения. В следующей своей работе Берини анализирует моды в полосках, заключенных в асимметричную среду. В этом случае дальнедействующая мода отсутствует, поскольку поверхностные плазмон-поляритоны на двух разных границах раздела металл/диэлектрик не совпадают по фазе [Berini, 2001].

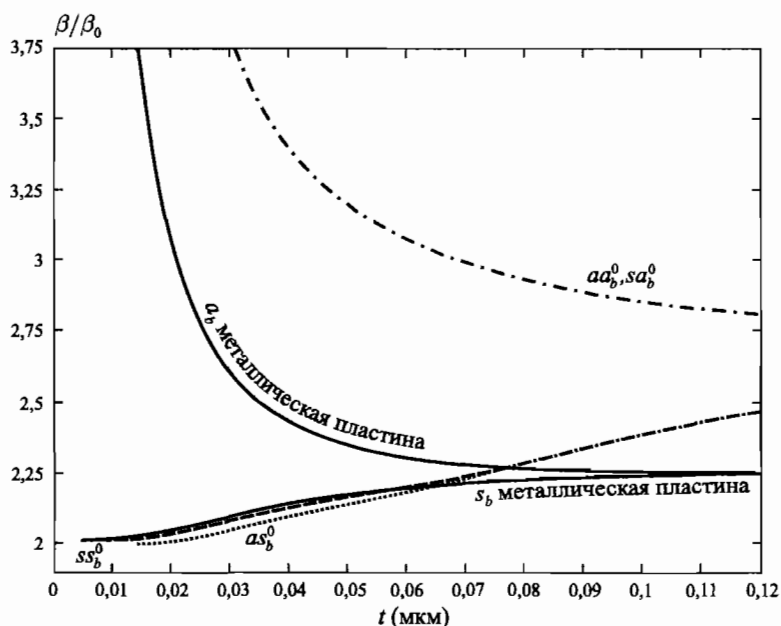


Рис. 7.10. Изменение коэффициента пропускания для первых четырех мод серебряной полоски шириной 1 мкм, помещенной в однородную среду с диэлектрической постоянной $\varepsilon = 4$. Возбуждение происходит при вакуумной длине волны $\lambda_0 = 633$ нм. На рисунке также показаны симметричные и антисимметричные моды граничной поверхности бесконечной ширины (обозначенные как «металлическая пластина»). (а) Нормированный коэффициент фазы. (б) Нормированный коэффициент затухания [Verini, 1999]. © Optical Society of America, 1999. Используется с разрешения правообладателя

Изучение свойств дальнедействующей моды помогает усвоить общий принцип взаимосвязи между локализацией и потерями в плазмонных волноводах. Баланс между локализацией поля и потерями энергии мы будем учитывать в продолжении всей главы. Локализация поля вблизи границ раздела металла с диэлектриком обязательно предполагает, что существенная часть общей энергии моды заключена внутри самого металла, поэтому в результате нагрева джоулевой теплотой потери на распространение увеличиваются. Далее мы увидим, что передача электромагнитной энергии с субволновым удержанием моды обеспечивает дальность распространения в пределах микрона или даже меньше. С другой стороны, дальнедействующая

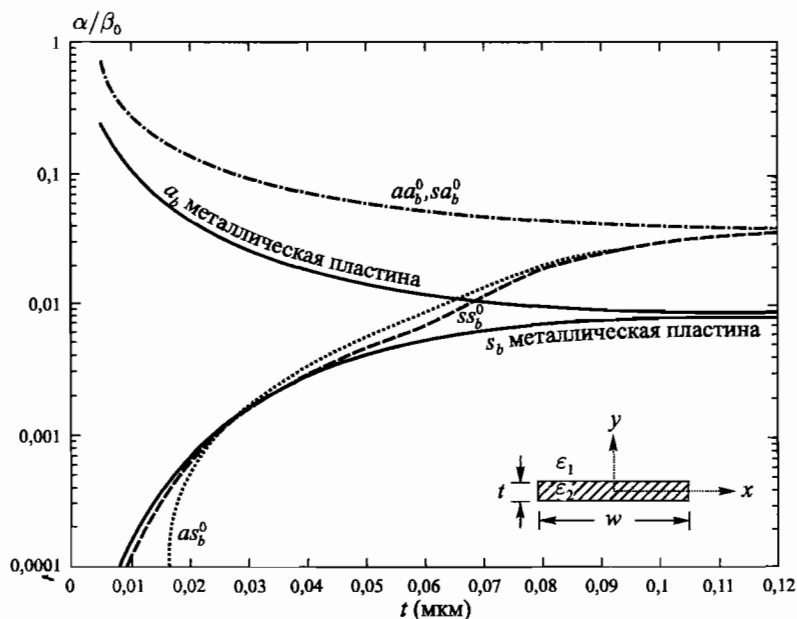


Рис. 7.10. (продолжение)

щие моды ППП в металлических полосках обеспечивают дальность затухания (нормированную к ϵ) почти в 1 см на частотах ближней инфракрасной области спектра. Такие показатели объясняются низким удержанием при толщине пленки порядка 20 нм.

С точки зрения практической реализации дальнедействующая мода обладает еще одним полезным свойством: при малой толщине t ее пространственно-полевой профиль выявляет гауссовоподобное распределение [Veriņi, 2000]. На рис. 7.11 показано пространственное распределение действительной части вектора Пойнтинга для полосок толщиной 100 нм (а) и 40 нм (б). В случае толстой полоски передаваемая энергия концентрируется вблизи боковых границ полоски (рис. 7.11а). Для тонкой пленки гауссова форма профиля (рис. 7.11б) обеспечивает эффективное связывание в продольном направлении за счет пространственного согласования мод.

В рамках первой экспериментальной демонстрации дальнедействующей моды использовалась золотая полоска толщиной $t = 20$ нм и шириной $w = 8$ мкм, расположенная внутри стекла. Дальность распространения со-

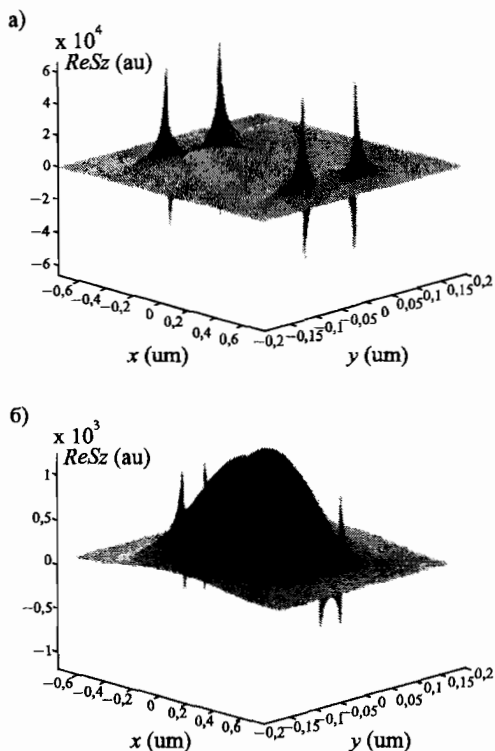


Рис. 7.11. Модовый профиль действительной части вектора Пойнтинга для дальнедействующей моды ($\lambda_0 = 633$ нм) серебряной полоски толщиной 100 нм (а) или 40 нм (б) и шириной 1 мкм. При малой толщине пленки мода имеет гауссовоподобную форму [Berini, 1999]. © Optical Society of America, 1999. Используется с разрешения правообладателя

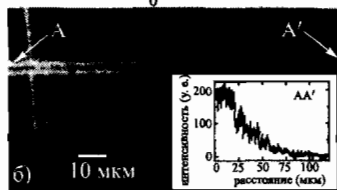
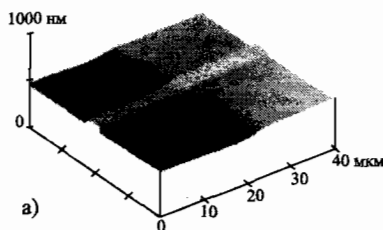
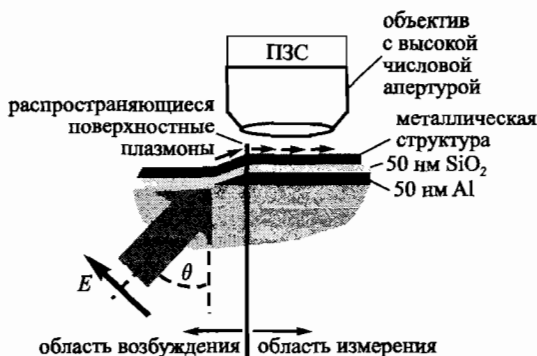
ставила несколько миллиметров [Charbonneau et al., 2000]. Результаты других количественных расчетов таковы: для полосок аналогичной ширины с толщиной 10 нм, находящихся в полимерной среде, потери на распространение составили всего 6–8 дБ/см при длине волны $\lambda_0 = 1550$ нм, и это было подтверждено экспериментально [Nikolaajsen et al., 2004a]. Вдоль нанопроводов, толщина которых меньше длины световой волны, поверхностные плазмон-поляритоны также распространяются на большие расстояния [Leosson et al., 2006], но соответствующая мода значительно рассеивается в окружающую диэлектрическую среду, чего и следовало ожидать.

В связи с тем, что полосковые волноводы обеспечивают хорошую дальность распространения и имеют ширину порядка микрона (допуская тем самым возможность пространственного структурирования), они используются для демонстрации работы полезных оптических элементов, таких как отводы и оптопары [Charbonneau et al., 2005], брэгговские отражатели, выравненные непосредственно на поверхности волновода [Jette-Charbonneau et al., 2005], интегрированные мониторы контроля мощности, основанные на прямом детектировании выработки джоулевой теплоты [Bozhevolnyi et al., 2005a]. Кроме того, исследователи продемонстрировали возможность использования переключателей и модуляторов, работа которых основана на этом же тепловом принципе [Nikolajsen et al., 2004b]. Интересно, в каких коммерческих проектах будут впервые применяться эти волноводы?

Рассмотрим теперь вторую важную геометрию волноводов: металлическая полоска расположена поверх диэлектрической подложки, а сверху ее окружает воздух. В силу большой диэлектрической асимметрии между подложкой и верхним слоем дальнедействующей моды в такой геометрии нет. Лампрехт и его коллеги провели тщательное исследование дальности распространения ППП в таких полосках. В своих экспериментах они использовали полоски золота и серебра толщиной 70 нм и шириной $1 \leq w \leq 54$ мкм [Lamprecht et al., 2001]. На верхней границе раздела металл/воздух поверхностные плазмон-поляритоны возбуждались с помощью установки призмного ввода излучения с экранирующим слоем для предотвращения актов возбуждения непосредственно вдоль полоски (рис. 7.12). Улавливая свет, рассеянный шероховатостью поверхности, Лампрехт и его коллеги наблюдали за распространением поверхностных плазмон-поляритонов. Они заметили, что с уменьшением ширины полоски (пока она не станет соизмеримой с длиной волны возбуждения) резко снижается дальность распространения (рис. 7.13, точечные данные).

Помимо того, что рассматриваемая структура обеспечивает значительно меньшую дальность распространения ППП в сравнении с полосками, заключенными в однородную среду, следует также отметить, что моды, возбуждаемые на границе металл/воздух призмным вводом излучения, являются *модами утечки*, речь о которых шла в главе 3. Моды распространения ослабевают не только вследствие поглощения, но и вследствие переизлучения в подложку с более высоким показателем преломления. Продольное возбуждение полосковых мод в однородной среде, напротив, ведет к генерации истинно связанных мод системы.

Используя метод конечных разностей, Зиа и его коллеги рассчитали основную моду утечки и моды утечки высших порядков, которые существуют



Al-появление

Рис. 7.12. Установка для призмного возбуждения поверхностных плазмон-поляритонов (мода утечки), распространяющихся по тонким металлическим полоскам (слева). Алюминиевый экран препятствует прямому возбуждению вдоль полоски. (а) Полученное с помощью атомно-силового микроскопа изображение полоски шириной 3 мкм. (б) Фотоснимок в рассеянном свете, показывающий распространение поверхностных плазмон-поляритонов, возбужденных при $\lambda_0 = 633$ нм [Charbonneau et al., 2001]. © American Institute of Physics, 2001. Используется с разрешения правообладателя

в металлических полосках и возбуждаются призмным вводом излучения [Zia et al., 2005b]. На рис. 7.13 показаны расчетные значения дальности распространения ППП для квази-ТМ вторичной моды низшего порядка.

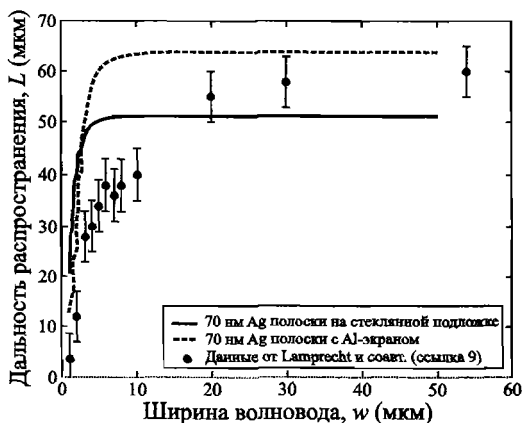


Рис. 7.13. Сравнение экспериментальных данных (точки на графике), касающихся дальности распространения поверхностных плазмон-поляритонов по тонким серебряным полоскам [Charbonneau et al., 2001], с результатами численного моделирования квази-ТМ вытекающих мод низшего порядка (кривые) [Zia et al., 2005b]. © American Physical Society, 2005. Используется с разрешения правообладателя

Квази-ТМ мода — это мода с ТМ-поляризацией в плоскости симметрии. Мы видим, что расчетные значения хорошо согласуются с результатами эксперимента, полученными Лампрехтом и его коллегами [Lampert et al., 2001] в опыте с экранирующим слоем. На рис. 7.14 показан расчетный модовый профиль для основной квази-ТМ моды утечки и для квази-ТМ моды утечки первого порядка для золотых полосок различной ширины. Также на рисунке показаны поперечные срезы профиля ближнепольной интенсивности излучения над полосками. Распределение интенсивности, полученное численным методом, сопоставимо с экспериментальными данными оптическим ближнепольного исследования, которое было проведено с применением призмепольного возбуждения ППП и улавливания света в ближнем поле апертурным волоконным острием [Weeber et al., 2003]. В качестве примера на рис. 7.15 продемонстрированы топографические и ближнепольное оптическое изображения золотых полосок высотой 55 нм и шириной 3,5 мкм и 2,5 мкм, на которых четко визуализируются распространяющиеся поверхностные плазмон-поляритоны. Поперечные срезы распределения интенсивности в ближнем поле (рис. 7.16) аналогичны расчетному распределению электрического поля (рис. 7.14, третья колонка). Отметим, что поскольку апертурные острия, улавливающие поля, покрыты тонким слоем

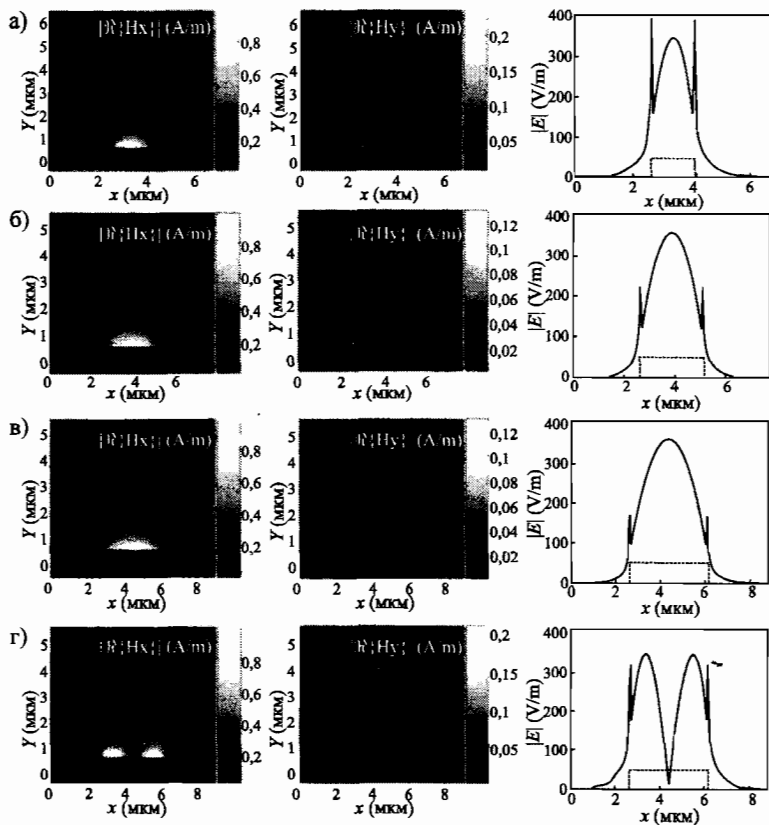


Рис. 7.14. Поперечные профили магнитного поля (первая и вторая колонки) и интенсивности электрического поля (третья колонка) для вытекающих квази-ТМ мод поверхностных плазмон-поляритонов, распространяющихся по золотым полосковым волноводам ($t = 55$ нм, $\lambda_0 = 800$ нм) для (а) $w = 1,5$ мкм (одиночная мода низшего порядка), (б) $w = 2,5$ мкм (одиночная мода низшего порядка), (с) $w = 3,5$ мкм (мода низшего порядка) и (д) $w = 3,5$ мкм (мода второго порядка) [Zia et al., 2005b]. © American Physical Society, 2005. Используется с разрешения правообладателя

хрома (и потому обладают пренебрежимо малой проводимостью на частоте возбуждения), ближнепольные оптические изображения действительно согласуются с распределением поля, изображенным в третьей колонке рисунка 7.14.

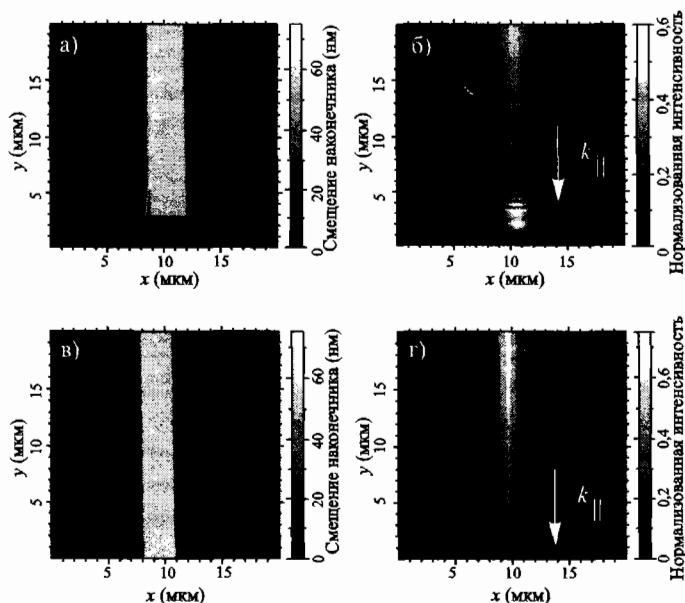


Рис. 7.15. Изображения, полученные с помощью атомно-силового микроскопа (а и с) и ближнепольного оптического микроскопа (b и d), золотых полосок высотой 55 нм и шириной $w = 3,5$ мкм (а и б) или $w = 2,5$ мкм (с и d) [Weeber et al., 2003]. © American Physical Society, 2003. Используется с разрешения правообладателя

Рассмотренный численный эксперимент не только объясняет наблюдаемое распределение ближнего поля и структуру мод утечки, которые возбуждаются призмным методом, но и доказывает существование нижней границы для ширины полоски: если ширина полоски ниже этого порогового значения, то в описанной геометрии не существуют распространяющиеся моды утечки. Дальнейшие численные исследования подтвердили справедливость описания полосковых ППП-волноводов на базе интуитивной модели диэлектрического волновода [Zia et al., 2005a]. Это значит, что к волноводам, проводящим поверхностные плазмон-поляритоны, применимы хорошо разработанные принципы диэлектрических волноводов [Saleh and Teich, 1991] в том случае, если коэффициент эффективности n_{eff} рассчитывается по формуле $n_{\text{eff}} = \frac{\beta}{k_0}$. Следовательно, поперечные размеры полосковых ППП-волноводов подчиняются *дифракционному пределу* $\Delta x \geq \frac{\lambda_0}{2n_{\text{eff}}}$.

который ограничивает поперечное удержание поля и интеграционную плотность волноводов рассматриваемого типа. Тем не менее, многие исследователи экспериментально подтвердили факт распространения по нанопроводам поверхностных плазмон-поляритонов с сильным удержанием (см. следующий раздел), поэтому требуются дальнейшие разъяснения касательно ограничений, накладываемых на поперечное удержание полосковых волноводов.

Как и в случае дальнедействующих ППП-волноводов, речь о которых шла выше, уже проведены первые демонстрации функциональных элементов, размещаемых непосредственно на поверхности полосковых волноводов. К таким элементам относят брэгговские отражатели [Weeber et al., 2004], трехгранные замыкательные пластинки, использующиеся при фокусировании поля ППП [Weeber et al., 2001]. Кроме того, исследователи продемонстрировали возможность интеграции полосковых ППП-волноводов с традиционными кремниевыми волноводами [Hochberg et al., 1985] и предложили способы применения полосковых ППП-волноводов для передачи энергии вдоль крутых изгибов, сочленяющих кремниевые волноводы.

7.4. Металлические нанопровода и конические волокна для эффективной передачи и фокусирования волн

Тот факт, что металлические волноводы, поперечное сечение которых значительно меньше квадрата длины волны λ передаваемого излучения, обеспечивают удержание поперечной моды ниже дифракционного предела в окружающей диэлектрической среде, легко вывести из соотношения неопределенности между поперечными составляющими волнового вектора и соответствующими поперечными пространственными координатами [Takahara et al., 1997]. Почему модовый объем волн, распространяющихся вдоль ядра диэлектрического волновода, ограничивается дифракцией? Если волны движутся в направлении z , то соотношение между коэффициентом распространения β , поперечными составляющими k_x, k_y волнового вектора и частотой ω передаваемого излучения имеет вид

$$\beta^2 + k_x^2 + k_y^2 = \varepsilon_{\text{core}} \frac{\omega^2}{c^2}. \quad (7.1)$$

Поскольку в диэлектрическом волноводе $\varepsilon_{\text{core}} > 0$, а k_x и k_y вещественнозначны, из соотношения (7.1) следует, что $\beta, k_x, k_y \leq \sqrt{\varepsilon_{\text{core}}} \omega / c = 2\pi n_{\text{core}} / \lambda_0$. Согласно соотношению неопределенности между волновым вектором и пространственными координатами модовый объем *трехмерных*

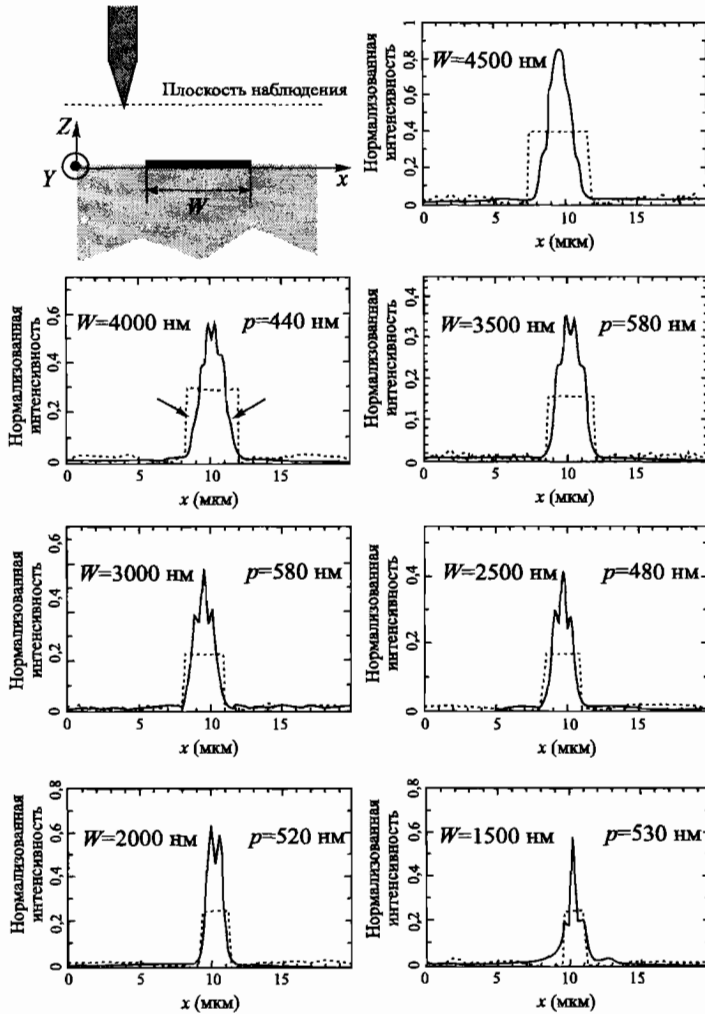


Рис. 7.16. Поперечные срезы ближнеполевой интенсивности различных полосок шириной w (см. рис. 7.15). Символом p обозначается расстояние между пиками интенсивности. Сравните с расчетными профилями в третьей колонке на рис. 7.13 [Weeber et al., 2003]. © American Physical Society, 2003. Используется с разрешения правообладателя

световых волн ограничивается эффективной длиной волны в ядре волновода:

$$d_x, d_y \geq \frac{\lambda_0}{2n_{\text{core}}}. \quad (7.2)$$

Если, однако, проводящая среда в ядре является металлической, то $\varepsilon_{\text{core}} < 0$ (пренебрегая затуханием). Чтобы удовлетворялось соотношение (7.1), необходимо, чтобы одна или обе поперечные составляющие k_x, k_y волнового вектора были мнимыми, т. е. чтобы передаваемые волны были соответственно двух- или одномерными. В этом случае условие (7.2) отпадает, и модовый объем может быть существенно ниже дифракционного предела окружающей диэлектрической оболочки. На основе рассуждений в главе 2 можно предположить, что *эффективная модовая площадь* передаваемых волн также должна быть ниже дифракционного предела. При этом, однако, следует учесть энергию моды в металле. Отметим, что металлические направляющие структуры, поперечное сечение которых меньше длины световой волны, не всегда поддерживают существование сильно локализованных мод. Об этом мы уже говорили при обсуждении дальнедействующих мод ППП.

Результаты исследований металлических волноводов из нанопроводов — в частности, металлических полосковых волноводов шириной меньше длины волны, расположенных поверх диэлектрической подложки, — подтверждаются экспериментально. Доказано существование вторичной моды распространения поверхностных плазмон-поляритонов в экспериментах с призмным возбуждением ППП и обычным оптическим микроскопом [Dickson and Lyon, 2000] или ближнепольным оптическим микроскопом, работающим в режиме улавливания света [Krenn et al., 2002]; микроскопы нужны для визуализации распространяющихся по поверхности волн. Направляющие свойства подобных структур иллюстрируются на рис. 7.17. На этом рисунке показаны топографическое (а) и ближнепольное оптическое (б) изображения золотого нанопровода длиной 20 мкм, шириной $w = 200$ мкм и $t = 50$ нм [Krenn et al., 2002]. На рис. 7.12 изображена вторичная мода поверхностных плазмон-поляритонов в проводе при $\lambda_0 = 800$ нм, также возбуждаемая призмным вводом излучения. Улавливая над проводом свет в ближнем поле, экспериментаторы узнают о том, какая часть энергии передается вдоль провода. На рис. 7.18а изображен поперечный срез ближнепольной интенсивности вдоль провода (сплошная линия), который можно аппроксимировать с учетом экспоненциального затухания с коэффициентом $L = 2,5$ мкм (пунктирная линия). Видим, что дальность распространения ППП значительно меньше, чем для полосок, ширина которых превышает два микрометра. Это наблюдение согласуется с резким умень-

шением дальности распространения, видимым на рис. 7.13 [Lamprecht et al., 2001]. Если укоротить провод, то колебания интенсивности в ближнем поле будут свидетельствовать о наличии стоячих (стационарных) волн, обусловленных отражением поверхностных плазмон-поляритонов на концах провода (рис. 7.18а, вкладка). Поперечное удерживание характеризует поперечный срез оптической ближнеполюсной интенсивности в направлении, перпендикулярном оси провода (рис. 7.18б). Видим, что поля локализируются главным образом в пределах физических размеров провода.

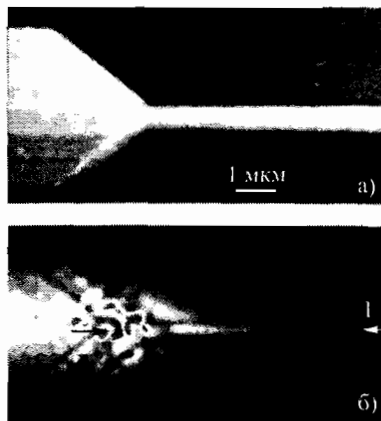


Рис. 7.17. Топографическая (а) и оптическая ближнеполюсная (б) интенсивность золотого нанопровода длиной 20 мкм и шириной $w = 200$ нм, которая возбуждается при $\lambda_0 = 800$ нм. Стрелками обозначено положение среза l на рис. 7.18 [Krenn et al., 2002]. © Institute of Physics, 2002. Используется с разрешения правообладателя

Обратите внимание, что наблюдаемая вторичная мода распространения поверхностных плазмон-поляритонов, возбуждаемая методом призмного ввода излучения, противоречит теоретическому исследованию Зи и его коллег (об этом исследовании мы говорили в предыдущем разделе). Согласно полученным этими авторами результатам, основная мода утечки, поддерживаемая полоской, перестает существовать при ширине полоски, меньшей определенного порогового значения. Поскольку результаты их работы согласуются с ближнеполюсными оптическими исследованиями полосок шириной $w \geq 1$ мкм, описание моды, которую наблюдали Кренн и его коллеги, требует дальнейших теоретических разъяснений.

Помимо моды утечки вдоль нанопровода, за пределами светового конуса подложки можно возбудить связанную моду, если использовать не

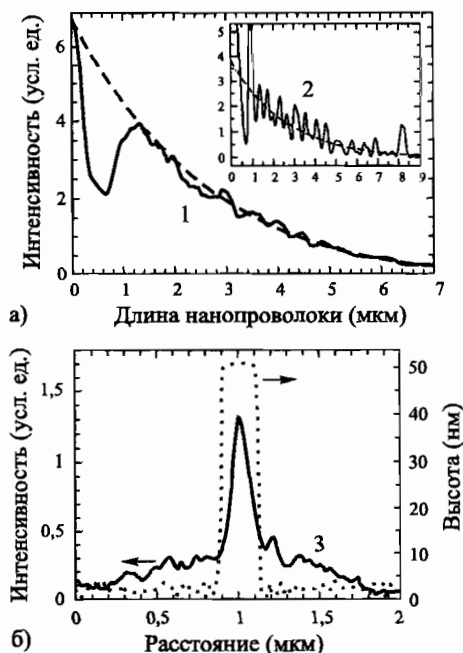


Рис. 7.18. (а) Кривая 1: оптическая ближнеполевая интенсивность по оси нанопровода длиной 20 мкм, изображенного на рис. 7.17 (сплошная линия) и экспоненциальное приближение с коэффициентом затухания $L = 2,5$ мкм (пунктирная линия). Кривая 2: то же самое для провода длиной 8 мкм; интерференционная картина обусловлена отражениями. (б) Поперечный срез оптической ближнеполевой интенсивности (сплошная линия), перпендикулярный к оси провода, и зафиксированный с помощью сканирующего электронного микроскопа топографический профиль (точечная линия) [Klepp et al., 2002]. © Institute of Physics, 2002. Используется с разрешения правообладателя

призменное возбуждение, а возбуждение высокоапертурным объективом. Дитлбахер и его коллеги применили этот метод для возбуждения связанных поверхностных плазмон-поляритонов, распространяющихся вдоль серебряного провода длиной 18,6 мкм и шириной $w = 120$ нм [Ditlbacher et al., 2005]. С помощью оптической микроскопии ближнего поля и дальнего поля они подтвердили распространения поверхностных плазмон-поляритонов на большие расстояния $L \approx 10$ мкм. Такая дальность распространения, значительно превышающая соответствующий результат начального исследования нанопровода, объясняется, возможно, тем, что мода, возбуждаемая

сфокусированным пучком света, является связанной и потому не сопровождается дифракционными потерями излучения в подложку. Кроме того, нанопровода в этом исследовании были подготовлены методом химического синтеза, а не электронно-лучевой литографией, поэтому их структура была сильно кристаллической, снижающей энергетические потери. Отражение поверхностных плазмон-поляритонов на концах нанопровода дает резонансную структуру в условиях освещения белым светом, поэтому короткие провода играют роль резонаторов ППП, поперечное сечение которых меньше длины световой волны. Тот факт, что химически синтезированные наноструктуры повышают эффективность передачи волн, кажется крайне обнадеживающим.

Учитывая отрадные результаты, касающиеся удержания поперечной моды и хорошей дальности распространения, превышающей 1 микрон, мы предполагаем, что металлические нанопровода можно использовать для создания миниатюрных фотонных цепей, передающих электромагнитную энергию с частотами видимой области спектра [Takahara et al., 1997; Dickson and Lyon, 2000]. Остается узнать, какая геометрия будет предпочтительней для практических реализаций: рассмотренная выше или геометрия волноводов металл/диэлектрик/металл, речь о которой пойдет в следующем разделе.

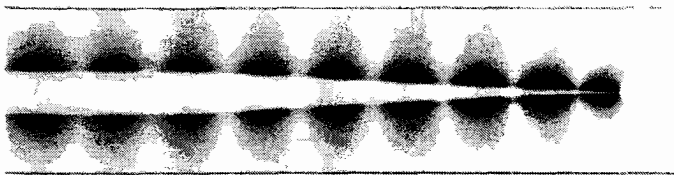


Рис. 7.19. Распределение электрического поля вокруг конического кварцевого волокна, покрытого слоем серебра толщиной 40 нм. Конусность составляет 6° , а начальный радиус кварцевого конуса равен 160 нм. Вершина конуса имеет форму полусферы с диаметром 10 нм. Отчетливо видны перенос энергии от волокна к плазмонной моде и концентрация энергии ($\lambda_0 = 1,3$ мкм)

Прежде чем двигаться дальше, проанализируем возможность адиабатического роста удержания поперечной моды вдоль провода. С точки зрения интуиции можно предположить, что высокая локализация оптической энергии у поверхности металлического нанопровода дает возможность дальнейшего фокусирования поля за счет придания нанопроводу конической формы (рис. 7.19). Применяя аналитический граничный анализ конической геометрии металлического острья, Бабаджанян и его коллеги

предположили, что уменьшение длины волны по мере распространения поверхностных плазмон-поляритонов вдоль конического провода к областям постоянно уменьшающегося диаметра обеспечивает возможность нанофокусирования, которое сопровождается гигантским усилением поля у вершины [Babadjanyan et al., 2000]. Впоследствии это явление было подтверждено теоретически с применением приближения Венцеля–Краммерса–Бриллюэна, в результате которого были вынесены следующие предположения: время продвижения поверхностных плазмон-поляритонов к бесконечно заостряющейся вершине должно логарифмически расходиться [Stockman, 2004]. Тщательное исследование нелокальных эффектов, характерных для дисперсии поверхностных плазмон-поляритонов в областях малого диаметра конуса примерно в нескольких нанометрах от вершины, подтвердили фокусирующие свойства подобных конических проводов [Ruppin, 2005]. Помимо применений в планарной геометрии, потенциально возможными являются экспериментальные реализации суперфокусирующих структур для оптического исследования поверхностей в оптической микроскопии ближнего поля. На рис. 7.19 показано распределение электрического поля для радиально симметричной моды наноконуса в продольном его срезе. Видим, что уменьшение длины волны с приближением к вершине сопровождается ростом локализации и, как следствие, усилением поля. В рассматриваемом случае наноконус состоит из традиционно используемого конического кварцевого волокна, покрытого тонким слоем серебра. Происходит передача энергии от волоконной моды к плазмонной моде, а затем энергия еще более концентрируется по мере продвижения моды к вершине.

7.5. Моды, локализованные в зазорах и канавках

Когда мы говорили о металлических полосках, заключенных в одномерную среду, мы рассматривали только дальнедействующие моды поверхностных плазмон-поляритонов со слабой локализацией поля. Другие моды, такие как асимметричные моды sa_b^0 или aa_b^0 , обеспечивают *субволновое* удержание в направлении, перпендикулярном границам раздела сред (рис. 7.10) [Berini, 2000]. Кроме того, на основе исследований металлических нанопроводов, описанных в предыдущем разделе, мы предположили, что для таких структур площадь поперечной моды меньше дифракционного предела. Рассмотрим другую структуру, обеспечивающую субволновое удержание, — волноводы металл/диэлектрик/металл. Эта структура легко подвергается не только аналитическому исследованию, но и практической реализации. В этой структуре мода локализуется вблизи диэлектрического ядра и имеет форму связанных ППП в зазоре между двумя границами

раздела сред. В главе 2 мы уже анализировали субволновую локализацию энергии для основной моды, поддерживаемой этой структурой. Мы видели, что даже при уменьшении зазора достаточно большая часть общей модовой энергии остается внутри металла, а усиление локализации у границы раздела сред дает сильное электрическое поле внутри диэлектрического ядра. Как следствие, эффективная модовая длина одномерной системы смещается в субволновую область. Итак, удержание моды ниже дифракционного предела в волноводах металл/диэлектрик/металл вполне может обеспечить возможность применения интегрированных фотонных кристаллов с высокой плотностью размещения волноводных механизмов [Zia et al., 2005c].

Исследователи провели аналитический анализ двумерных локализованных мод в волноводах, основанных на распространении поверхностных плазмон-поляритонов в зазоре между двумя металлическими средами, как в случае вертикальных геометрий [Tanaka and Tanaka, 2003] (так, как мы делали в главе 2), так и в случае планарных геометрий [Veronis and Fan, 2005; Pile et al., 2005]. Практическая реализация одной из таких планарных геометрий, содержащих зазор, подтвердила возможность возбуждения ППП методом продольного ввода излучения в волновод даже тогда, когда ширина зазора меньше длины световой волны [Pile et al., 2005].

К другой простой геометрии щелевых волноводов ППП относятся канавки треугольной формы, вытравленные на металлической поверхности. Аналитические расчеты [Novikov and Maradudin, 2002] и моделирование методом конечных разностей во временной области [Pile and Gramotnev, 2004] показали, что на дне канавки существует связанная мода ППП с субволновым удержанием. Из-за фазового рассогласования между модами поверхностных плазмон-поляритонов, распространяющихся на дне канавки и границах наклонной плоскости, мода удерживается на дне и не развивается в горизонтально-вертикальном направлении. С качественной точки зрения дисперсия моды аналогична дисперсии в планарных структурах [Bozhevolnyi et al., 2005b]. Экспериментально доказано, что если сделать (с помощью сфокусированного ионного луча) на золотой поверхности канавки шириной 0,6 мкм и глубиной 1 мкм, то такой волновод будет поддерживать связанную моду ППП, распространяющуюся в окне дальней связи ближней инфракрасной области спектра на расстоянии порядка 100 мкм, ширина моды составит 1,1 мкм [Bozhevolnyi et al., 2005b]. Достаточно большая дальность распространения, обеспечиваемая этой геометрией, позволяет создавать функциональные фотонные структуры. На рис. 7.20 и 7.21 изображены несколько функциональных структур, в которых поверхностные плазмон-поляритоны распространяются при $\lambda_0 = 1500$ нм: волноводные разветвители, интерферометры и переходники на кольцеобразные

волноводы для фильтрации [Bozhevolnyi et al., 2006]. В рамках этого исследования, однако, размеры канавки и волноводных мод были не намного меньше длины световой волны. Этим и объясняется относительно большая дальность распространения в сравнении с дальностью распространения волн в нанопроводах или волноводах из наночастиц. О последних мы расскажем в следующем разделе.

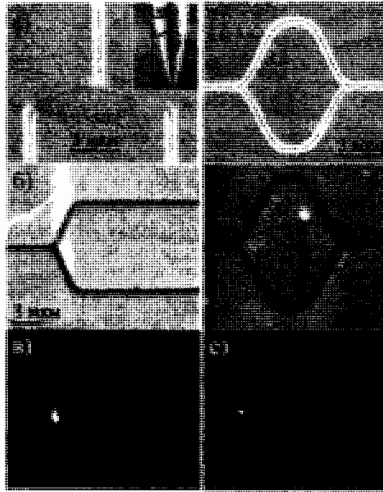


Рис. 7.20. Изображения, полученные с помощью сканирующего электронного микроскопа (а, г), топографа (б, д) и оптического ближнепольного микроскопа (в, е), канальных волноводов, проводящих поверхностные плазмон-поляритоны, внутри металлической пленки. Печатается с разрешения издательства Macmillan Publishers Ltd: Nature [Bozhevolnyi et al., 2006], © 2006

7.6. Металлические наночастичные волноводы

Другая концепция волноводов, проводящих электромагнитные волны с поперечным удержанием ниже дифракционного предела, основана на образовании ближнепольных связей между близко расположенными металлическими наночастицами. В главе 5 мы видели, что одномерный массив частиц допускает существование связанных мод, обусловленных ближнепольными взаимодействиями между соседними частицами. Если расстояние между двумя центрами соседних частиц составляет $d \ll \lambda$, где λ — длина световой волны в окружающей диэлектрической среде, то сосед-

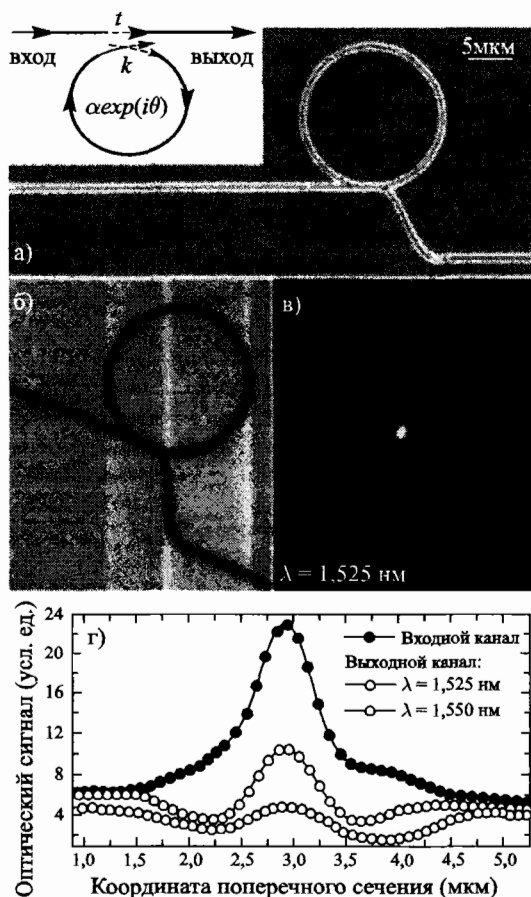


Рис. 7.21. Изображения, полученные с помощью сканирующего электронного микроскопа (а), топографа (б) и оптического ближнепольного микроскопа (в), канално-капельного фильтра на основе V-канального волновода и кольцевого резонатора. На рисунке (г) показаны поперечные сечения входного и выходного каналов, полученные из (в) для двух разных длин волновода; эти сечения демонстрируют коэффициент экстинкции при резонансе. Печатается с разрешения издательства Macmillan Publishers Ltd: Nature [Bozhevolnyi et al., 2006], © 2006

ние частицы подвергаются дипольным взаимодействиям, причем взаимодействия в ближнем поле преобладают, а соответствующий член пропорционален d^{-3} .

Вследствие образования связей цепочка наночастиц поддерживает одну продольную и две поперечные моды распространения волн поляризации. С помощью ряда приближений был проанализирован перенос энергии вдоль такой цепи. Начало этим исследованиям положила работа Квинтена и его коллег, основанная на теории рассеяния Ми [Quinten et al., 1998]. В рамках этого исследования делается предположение о возможности передачи энергии и дальность распространения оценивается как не превышающая один микрон. В последующих исследованиях внимание фокусируется на дисперсионных свойствах. Представление частиц в виде точечных диполей позволяет рассчитывать квазистатическое дисперсионное отношение, кривая которого показана на рис. 7.22 (сплошные кривые) для случаев продольной и поперечной поляризации [Brongersma et al., 2000]. Групповая скорость переноса энергии характеризуется крутизной дисперсионных кривых; она максимальна тогда, когда возбуждение происходит с частотой одночастичного плазмона, и располагается в центре первой зоны Бриллюэна. Позднее были внесены поправки к этому решению, учитывающие мультиполи высших порядков, но опять же в квазистатическом приближении [Park and Stroud, 2004].

Дисперсионные отношения, получаемые с помощью полной системы уравнений Максвелла, являются более точными, чем квазистатическое приближение. Они выявляют существенное отличие дисперсионного отношения для поперечной моды вблизи линии освещения (рис. 7.22). Это отличие обусловлено фазовой синхронизацией между поперечной дипольной модой и фотонами, распространяющимися вдоль волновода с той же частотой [Weber and Ford, 2004; Citrin, 2005b; Citrin, 2004]. Для продольных мод такое согласование невозможно, поэтому кривые дисперсионного отношения соответствуют квазистатическому результату. На рис. 7.23 показаны примерные распределения электрического поля для волноводных мод, рассчитанные по методу конечно-разностного моделирования во временной области импульса, распространяющегося по цепочке золотых сфер диаметром 50 нм, расстояние (по воздуху) между центрами которых составляет 75 нм. Результаты моделирования также подтвердили, что фазовая скорость поперечных мод отрицательна [Maier et al., 2003a].

Для возбуждения бегущих волн с максимальной групповой скоростью нужна локальная схема возбуждения, поскольку возбуждение в дальнем поле генерирует лишь моды вблизи точки $k = 0$ на диаграмме дисперсии. Анализируя смещение плазмонного резонанса в сравнении со смещением для одиночной частицы (или для массива достаточно удаленных друг от друга частиц), можно оценить силу связывания. Напомним, что сдвиг плазмонного резонанса происходит вследствие межчастичных взаимодействий

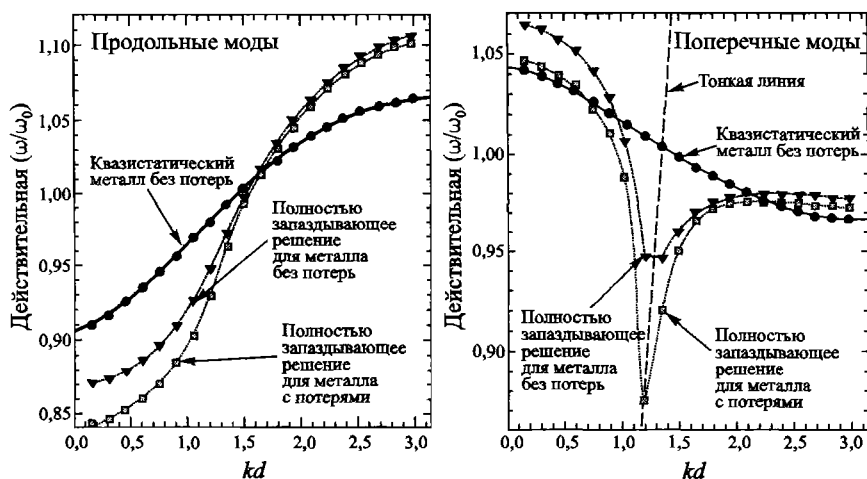


Рис. 7.22. Квазистатическое приближение дисперсии продольной (слева) и поперечной (справа) мод, которые поддерживаются бесконечной цепочкой сферических частиц (сплошные линии [Brongersma et al., 2001]), конечной цепочкой из 20 сферических частиц (заштрихованные кружочки). На рисунке также показаны аналогичные решения с полным запаздыванием для металла с потерями (квадратики) и металла без потерь (треугольники). Разница между моделями четко видна в случае поперечной поляризации [Weber and Ford, 2004]. © American Physical Society, 2004. Используется с разрешения правообладателя

в условиях синфазного возбуждения (см. глав 5). На рис. 7.24 изображен волновод, состоящий из серебряных стержней, соотношение сторон для которых равно $90 \times 30 \times 30 \text{ нм}^3$. Стержни разделены зазором в 50 нм. Видим, что спектр экстинкции для этой цепочки совпадает с соответствующим спектром для удаленных друг от друга частиц. Существенный сдвиг в синюю область спектра обусловлен взаимодействием частиц.

Для локального возбуждения в этой структуре бегущей волны в качестве локального источника света использовалось острие оптического ближнепольного микроскопа. Передача энергии вдоль массива частиц детектировалась по наблюдению за флуоресцирующими гранулами полимера (рис. 7.25a) [Maier et al., 2003b]. В рамках этого исследования с помощью острия ближнепольного микроскопа сканировался ансамбль волноводов (панель б), регистрировались полученные с его помощью флуоресцентные пятна, которые затем сравнивались для двух случаев: когда гранулы расположены на расстоянии от волноводов (панель в) и поверх их (па-

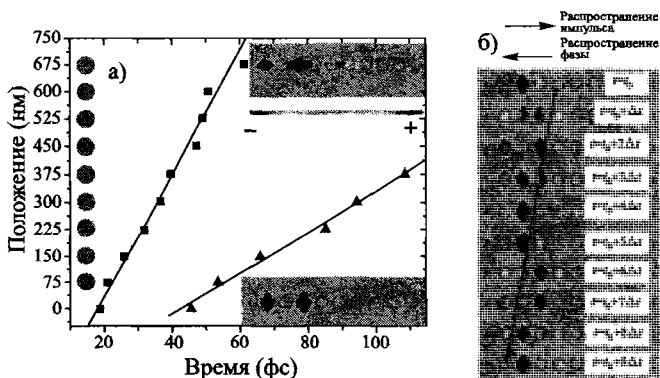


Рис. 7.23. Конечно-разностное моделирование импульса во временной области, распространяющегося по цепочке из золотых сфер диаметром 50 нм, расстояние между центрами которых составляет 75 нм. (а) Положения пика импульса, отцентрированного по резонансной частоте одной частицы, в зависимости от времени прохождения импульса по цепочке в случае продольной (квадратики) и поперечной (треугольники) поляризации. На этом же рисунке приводятся снимки распределения электрического поля. (б) Снимки распределения электрического поля для поперечной моды с отрицательной фазовой скоростью. Стрелками обозначено направление движения отдельно взятого фазового фронта [Maier et al., 2003a]. © American Physical Society, 2003. Используется с разрешения правообладателя

нель г). В последнем случае наблюдается удлинение профиля флуоресцентного пятна в направлении волновода. Это удлинение обусловлено возбуждением на расстоянии посредством волновода из частиц: передача энергии осуществляется от острия микроскопа к волноводу и затем по волноводу к флуоресцентной частице (см. схему на панели а). На рис. 7.26 изображены поперечные сечения, проходящие через флуоресцентные пятна; видим, что энергия передается по цепочке частиц на расстояние 500 нм. Основные аспекты этой схемы возбуждения были подтверждены численным анализом [Girard and Quidant, 2004].

Вследствие резонансного возбуждения с частотой плазмонного резонанса поля хорошо удерживаются вблизи волноводной структуры. Подобное явление мы наблюдали при рассмотрении нанопроводов в предыдущем разделе. Сильное удержание предполагает большие энергетические потери и дальность распространения всего 1 мкм или даже ниже, в зависимости от длины волны возбуждения и диэлектрической постоянной окружающей среды. Исследователи продемонстрировали применение такой структуры в качестве конденсатора для каналирования энергии [Nomura et al.,

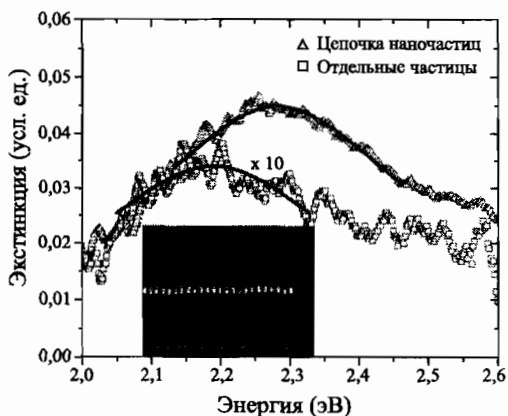


Рис. 7.24. Экспериментальные данные, касающиеся плазмонного резонанса, для единичных серебряных стержней и цепочки близко расположенных друг к другу стержней в условиях поперечного освещения (вдоль длинной оси стержней). Фиолетовое смещение одного спектра относительно второго обусловлено ближнепольными взаимодействиями частиц в цепочке. Печатается с разрешения издательства Macmillan Publishers Ltd: Nature Materials [Maier et al., 2003b], © 2003

2005], а также возможность использования коротких структур автомобильных сфер в качестве наноплинз для фокусирования в ближнем поле. Напомним, что для этой же цели могут использоваться конические волокна, рассмотренные в предыдущем разделе [Li et al., 2003].

Гораздо большая дальность распространения достигается при нерезонансном возбуждении с низкими частотами. И хотя потери вследствие поглощения снижаются, излучательные потери настолько возрастают, что для удержания энергии вблизи волновода требуются не одномерные цепи, а другие механизмы. С этой точки зрения потенциально полезным может оказаться наночастичный плазмонный волновод, работающий в окне дальней связи при $\lambda_0 = 1,5$ мкм [Maier et al., 2004; Maier et al., 2005]. Он обеспечивает даже лучшее удержание, чем дальнедействующие полосковые волноводы, которые мы обсуждали в разделе 7.3, но меньшую дальность распространения — порядка 100 мкм. Этот волновод состоит из двумерной решетки металлических наночастиц, расположенной поверх тонкой кремниевой мембраны (рис. 7.27d). Удержание по вертикали обеспечивается гибридной волноводной модой плазмон/мембрана, а поперечное удержание может обеспечиваться горизонтальным выравниванием размера наночастиц, которое создает более эффективный индекс преломления

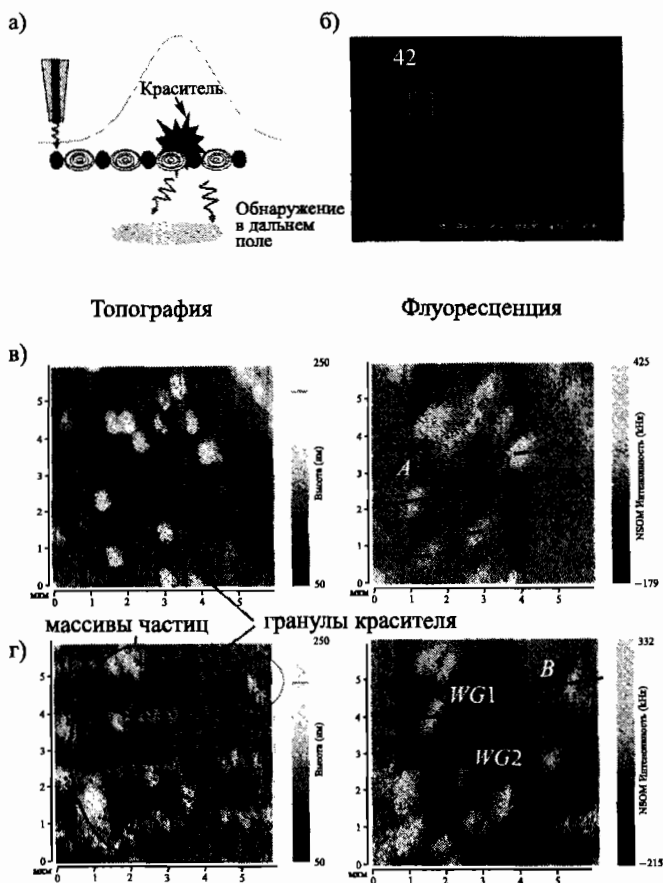


Рис. 7.25. Локальное возбуждение и регистрация переноса энергии в плазмонных волноводах из металлических наночастиц. (а) Схема эксперимента, (б) полученные с помощью сканирующего электронного микроскопа изображения плазмонных волноводов, (в, г) топография и флуоресценция. На рисунках (в) видны флуоресцентные сферы в области, где нет волноводов. На рисунках (г) сферы расположены поверх концов четырех цепочек наночастиц. Кружочками и линиями обозначены флуоресцентные пятна, которые анализируются на рис 7.26. Печатается с разрешения издательства Macmillan Publishers Ltd: Nature Materials [Maier et al., 2003b], © 2003

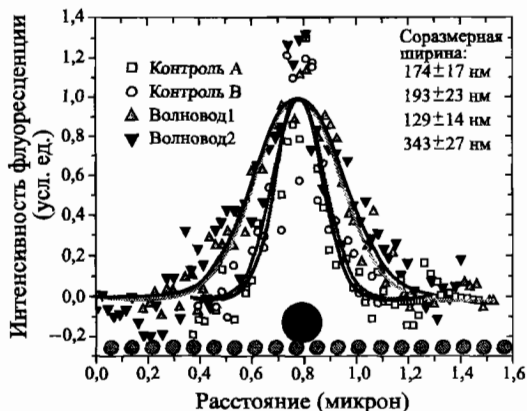


Рис. 7.26. Интенсивность флуоресцентного сигнала вдоль поперечных срезов, изображенных на рис. 7.25с, d, для контрольных флуоресцирующих сфер, находящихся за пределами волноводов (квадратики), и сфер, расположенных поверх волноводов из частиц (треугольники). Во втором случае увеличение ширины пиков флуоресценции свидетельствует о возбуждении на расстоянии посредством волноводов из частиц (см. схему на рис. 7.25а). Печатается с разрешения издательства Macmillan Publishers Ltd: Nature Materials [Maier et al., 2003b], © 2003

в центре волновода. Таким образом, мода удерживается в области с более высоким показателем преломления; поперечное удержание оказывается порядка длины волны, а удержание по вертикали — меньше длины волны (рис. 7.27b, c). Подчеркнем, что описанная концепция инжиниринга электромагнитного отклика с помощью решетки частиц подобна той, что характерна для сконструированных плазмонов (глава 6).

Направление распространения периодически, поэтому плазменная мода отбрасывается назад в первую зону Бриллюэна (рис. 7.27а). Как следствие, рассмотренная схема является весьма удобной для возбуждения волн, если поверх волновода располагать конические волокна (рис. 3.14): в этом случае может происходить противоположенное синфазное затухающее взаимодействие между коническим волокном и плазменной модой.

Кроме того, коническое волокно удобно использовать для исследования пространственных и дисперсионных свойств наночастичного волновода. Чтобы пространственно отобразить волноводные моды, волокно перемещают вдоль волновода в поперечном направлении и регистрируют количество энергии, зависящее от длины волны, которое передается по области взаимодействия. На рис. 7.28а показана зависимость энергии, переносимой

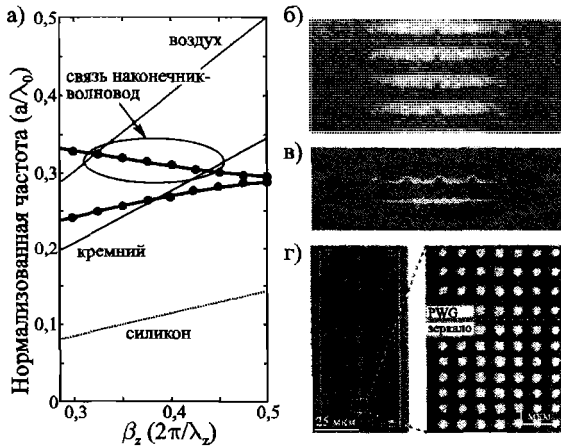


Рис. 7.27. Дисперсионное отношение (а) и модовые профили для металлического плазмонного волновода, действующего в ближней инфракрасной области спектра (вид сверху (б) и вид сбоку (в)), на тонкой кремниевой мембране. (г) Полученное с помощью сканирующего электронного микроскопа изображение сборной установки [Maier et al., 2004]. © American Institute of Physics, 2004. Используется с разрешения правообладателя

через область взаимодействия, от длины волны и поперечного положения волока на волноводе. Моды низшего и первого порядков плазмонного волновода обнаруживаются по падению энергии при длине волны 1590 нм и 1570 нм (рис. 7.28b,c) в зависимости от того, где на поверхности волновода расположено коническое волокно: по центру или ближе к краю. Пространственное разрешение ограничивается диаметром волока, который в нашем случае составляет 1,5 мкм.

Если переместить волокно вдоль продольной оси волновода, то точка фазовой синхронизации сместится, потому что диаметр конуса изменится. На этом основано построение дисперсионного отношения. Кроме того, это же наблюдение доказывает противоположность взаимодействия (рис. 7.29а). По мере увеличения диаметра конуса (при этом дисперсионная кривая смещается в сторону линии освещения) точка фазовой синхронизации сдвигается в красную область спектра. Анализ дисперсионной диаграммы на рис. 7.27а подтверждает, что такое смещение характерно для случая взаимодействия в верхней зоне. Эффективность передачи энергии, которая была экспериментально достигнута с помощью этой геометрии, не превышает 75% (рис. 7.29б).

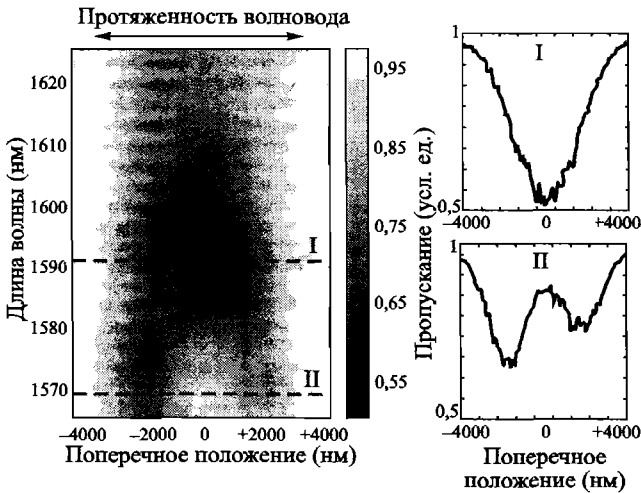


Рис. 7.28. (а) Перенос энергии через область взаимодействия в зависимости от длины волны и поперечного положения кварцевого конуса. Показана основная мода и мода первого порядка (б) [Maier et al., 2005]. © American Institute of Physics, 2005. Используется с разрешения правообладателя

Волноводы из металлических наночастиц, обеспечивающие низкие потери энергии, могут использоваться для высокоэффективного преобразования излучения, передающегося по оптическим волокнам, в двумерные моды поверхностных плазмон-поляритонов. После прохождения области взаимодействия возможна дальнейшая передача волн в различные структуры, расположенные поверх микросхемы, для сенсорного зондирования. При этом их, вероятно, потребуется соединить с волноводами, обеспечивающими еще большее удержание, чтобы добиться фокусирования поля.

7.7. Преодоление потерь за счет использования усиливающих сред

В главе 5 мы говорили о возможности преодоления неустранимых потерь на затухание (обусловленных омическим нагревом) в металлических структурах при помещении их в среды с оптическим усилением. В случае использования частиц оптическое усиление увеличивает поляризацию (5.7) и уменьшает ширину спектральных линий резонансной моды

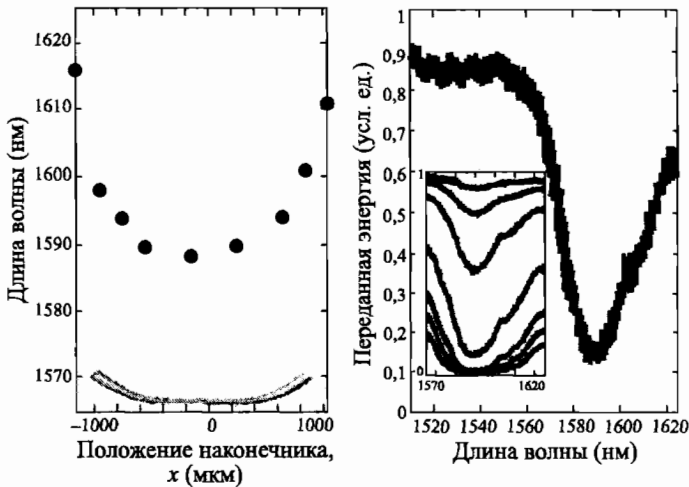


Рис. 7.29. (а) Спектральное положение точки фазовой синхронизации в зависимости от положения конуса при его движении вдоль оси волновода; график демонстрирует противонаправленность взаимодействия. (б) Мощность, переданная через область взаимодействия в условиях оптимальной связи; коэффициенты переноса составляют около 75%. На рисунке-вкладке показано изменение профиля взаимодействия по мере уменьшения зазора между конусом и волноводом [Maier et al., 2005]. © American Institute of Physics, 2005. Используется с разрешения правообладателя

с учетом ограничения, накладываемого усиливающим насыщением. Что касается волноводов, аналитические исследования цепочек частиц (подобных наночастичным плазмонным волноводам из предыдущего раздела), погруженных в усиливающую среду, дают следующие результаты: сопутствующее усиление межчастичного взаимодействия может привести к значительному увеличению дальности распространения, особенно для локализованных поперечных мод вблизи линии освещения [Citrin, 2005a].

В более широком контексте волноводного распространения поверхностных плазмон-поляритонов на плоских границах раздела сред можно было бы предположить, что наличие усиливающих сред обеспечит большую дальность распространения L . Еще более удивительно то, что при этом усилится локализация полей у границы раздела сред, и это легко доказать [Avrutsky, 2004]. Напомним, что в отсутствие усиливающей среды, напротив, удержание полей и энергетические потери находятся в компромиссной взаимосвязи. Продемонстрируем это, определив коэффициент эф-

фektivности ППП на границе раздела металл/диэлектрик, исходя из дисперсионного отношения (2.14):

$$n_{\text{eff}} = \sqrt{\frac{\varepsilon \varepsilon_d}{\varepsilon + \varepsilon_d}}, \quad (7.3)$$

где ε_d — диэлектрическая проницаемость изоляционного слоя. Как и при обсуждении локализованных плазмонов, в резонансном пределе поверхностных плазмонов, который определяется по формуле $\text{Re}[\varepsilon] = -\varepsilon_d$, коэффициент эффективности ППП, а также величина локализации ограничиваются ненулевой мнимой составляющей величины ε , обусловленной затуханием. Однако по аналогии с рассуждениями в главе 5 присутствие усиливающей среды может обнулить знаменатель в (7.3) и обеспечить тем самым большой коэффициент эффективности (значение которого ограничивается лишь насыщением усиления).

Эффект увеличения коэффициента эффективности n_{eff} распространения поверхностных плазмон-поляритонов в волноводах до сих пор не изучен детально. К настоящему моменту проведены различные аналитические и численные исследования данного вопроса, однако основное внимание здесь фиксируется на увеличении дальности распространения по металлическим полосковым [Nezhad et al., 2004] и щелевым волноводам [Maier, 2006a]. В обоих случаях возбуждение осуществлялось с частотами ближней инфракрасной области спектра; коэффициенты усиления, обеспечивающие распространение волн без потерь, приближаются к тем значениям, которые на сегодняшний день могут быть достигнуты при использовании сред с квантовыми ямами или квантовыми точками. К примеру, для одномерного щелевого волновода золото/полупроводник/золото распространение без потерь при $\lambda_0 = 1500$ нм и толщине внутреннего слоя 50 нм возможно в том случае, если коэффициент усиления в ядре с показателем $n = 3,4$ равен $\gamma = 4830 \text{ см}^{-1}$. На рис. 7.30 показано изменение мнимой части постоянной распространения $\text{Im}[\beta]$ с уменьшением размера внутреннего слоя для волноводов, в которых он состоит из воздуха (прерывистая серая линия) или полупроводящего материала ($n = 3, 4$) с нулевым усилением (прерывистая черная линия) или коэффициентами усиления $\gamma = 1625 \text{ см}^{-1}$ (серая линия) и $\gamma = 4830 \text{ см}^{-1}$ (черная линия) соответственно. Отметим, что условие $\text{Im}[\beta] < 0$ предполагает экспоненциальное возрастание энергии распространяющейся волны. Как и следовало ожидать, дальность распространения увеличивается с ростом коэффициента усиления (см. вкладку).

Итак, приведенные теоретические исследования дают весьма обнадеживающие результаты. Остается понять, имеется ли возможность использо-

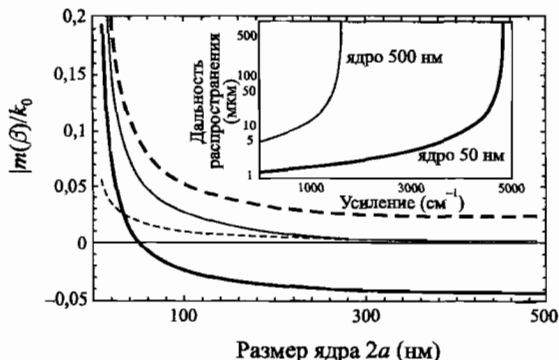


Рис. 7.30. Изменение мнимой составляющей коэффициента распространения $\text{Im}[\beta]$ для трехслойного волновода (золото/диэлектрик/золото) с уменьшением размера внутреннего слоя, состоящего из воздуха (серая пунктирная линия), полупроводящего материала ($n = 3, 4$) с нулевым коэффициентом усиления (черная пунктирная линия) и с коэффициентами усиления $\gamma = 1625 \text{ см}^{-1}$ (серая линия) и $\gamma = 4830 \text{ см}^{-1}$ (черная линия) соответственно. На рисунке-вкладке показана дальность распространения энергии для рассматриваемой моды. При стремлении коэффициента усиления к критическому значению, для которого $\text{Im}[\beta]=0$, $L \rightarrow \infty$ (см. рисунок-вкладку) [Maier et al., 2006a]. © Elsevier, 2006. Используется с разрешения правообладателя

вать среды с большим коэффициентом усиления, обеспечивающие распространение волн без потерь или с малыми потерями, в непосредственной близости от металлических проводящих структур.

ГЛАВА 8

Прохождение излучения сквозь отверстия и пленки

Поверхностные плазмон-поляритоны, их возбуждение и распространение *вдоль* границ раздела сред рассматривались нами применительно к плоской границе. В предыдущей главе мы обсудили, каким образом можно регулировать распространение этих волн за счет изменения структуры поверхности. В данной главе мы рассмотрим вопросы распространения электромагнитного поля в перпендикулярном направлении и рассмотрим перенос электромагнитной энергии *сквозь* тонкие металлические пленки, связанные с эффектами ближнего поля. Если пленка структурирована регулярным массивом отверстий, или вокруг единственного отверстия в пленке имеется гофрированный участок поверхности, то имеют место такие явления, как усиление пропускания и направленное излучение. В 1998 году было получено первое экспериментальное подтверждение этих явлений, с тех пор они вызывают повышенный интерес исследователей.

Прежде чем перейти к обсуждению указанных выше эффектов, будут рассмотрены физические принципы, лежащие в основе пропускания света сквозь субволновое круглое отверстие в тонком проводящем экране (размер отверстия меньше длины волны). В последующих главах будут рассмотрены вопросы усиления пропускания излучения сквозь массив отверстий и регулирование направления прошедшего луча с помощью гофрирования выходной стороны поверхности. Кроме того, мы исследуем роль поверхностных плазмон-поляритонов и локализованных плазмонов в светопропускании сквозь одиночное отверстие, окруженное регулярными бороздками. В конце главы приведем обзор первых практических применений данных эффектов и исследуем светопропускание сквозь перфорированные пленки, связанное с поверхностными плазмон-поляритонами.

8.1. Теория дифракции на субволновых отверстиях

Физические принципы, лежащие в основе прохождения света сквозь одиночное отверстие в непрозрачном экране, называемое апертурой, со-

ставляют тему исследований уже более ста лет. В силу волновой природы света его прохождение сквозь апертуру сопровождается *дифракцией*. Как следствие, анализ этого явления сложен даже в случае простейшей геометрии, в классической теории дифракции при этом используются различные приближения. Аспекты теории дифракции рассмотрены в базовых учебниках по электродинамике, например [Jackson, 1999], а с точки зрения проблемы прохождения, речь о которой идет в данной главе, необходимый материал содержится в обзорной статье [Воицкэмп, 1954]. В приведенных источниках особое внимание уделяется изучению пропускания света сквозь круглое отверстие радиуса r в бесконечно тонком идеально проводящем экране (рис. 8.1) — такую геометрию исследовать относительно просто.

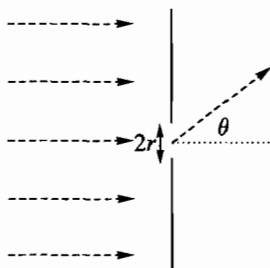


Рис. 8.1. Прохождение света сквозь круглое отверстие радиуса r в бесконечно тонком непрозрачном экране

Если радиус r апертуры существенно больше длины волны падающего излучения ($r \gg \lambda_0$), то задача решается достаточно эффективно с использованием принципа Гюйгенса–Френеля и его математической формулировки — скалярной теории дифракции Кирхгофа [Jackson, 1999]. Поскольку эта теория основана на применении скалярного волнового уравнения, в ней не учитываются эффекты, обусловленные поляризацией света. В случае нормального падения плоской световой волны можно показать, что интенсивность прошедшего излучения, приходящаяся на единичный телесный угол в дальней зоне (называемый *дифракцией Фраунгофера*), равна

$$I(\theta) \cong I_0 \frac{k^2 r^2}{4\pi} \left| \frac{2J_1(kr \sin(\theta))}{kr \sin \theta} \right|^2, \quad (8.1)$$

где I_0 — общая интенсивность излучения, падающего на апертурную площадь πr^2 , $k = 2\pi/\lambda_0$ — волновое число, θ — угол между нормалью к апертуре и направлением переизлученного света, а $J_1(kr \sin \theta)$ — функция Бес-

селя первого типа. Функциональная форма уравнения (8.1) соответствует хорошо известной эйри-структуре центрального светового пятна, окруженного концентрическими кольцами с убывающей интенсивностью. Падение интенсивности обусловлено гасящей интерференцией, зависящей от угла, и усиливающей интерференцией для лучей, выходящих из внутренней части апертуры. Отношение общей интенсивности прошедшего излучения к I_0 , равное

$$T = \frac{\int I(\theta) d\Omega}{I_0}, \quad (8.2)$$

называется *коэффициентом пропускания*. Для отверстий радиуса $r \gg \lambda_0$ этот коэффициент $T \approx 1$; этот случай соответствует применимости нашего приближения. В рассматриваемом режиме более точные численные расчеты дифракционной задачи дают, по сути, такой же результат, который следует из уравнения (8.1).

Поскольку нас интересует влияние поверхностных волн, в частности, поверхностных плазмон-поляритонов на процесс пропускания, режим субволновых апертур радиуса $r \ll \lambda_0$ представляет гораздо больший интерес, так как в этом случае доминирующими оказываются ближнепольные эффекты (в силу отсутствия распространяющихся мод в отверстиях пленок *конечной* толщины). Тем не менее даже приближенный анализ бесконечно тонкого идеально проводящего экрана требует использования уравнений Максвелла без каких-либо упрощений. В основе метода Кирхгофа лежит следующее допущение: электромагнитное поле в отверстии аналогично тому, которое было бы при отсутствии непрозрачного экрана, но это не согласуется с граничным условием обращения в ноль тангенциальной составляющей электрического поля на экране. Для больших отверстий это не дает большой ошибки, поскольку дифрагированные поля относительно малы по сравнению с прямо прошедшим полем. В случае субволновых отверстий такое приближение оказывается несостоятельным.

Предположив, что интенсивность падающего света I_0 постоянна по всей площади отверстия, Бете и Бувкамп получили точное аналитическое решение задачи определения светопропускания сквозь субволновое круглое отверстие в идеально проводящем бесконечно тонком экране [Bethe, 1944; Bouwkamp, 1950a; Bouwkamp, 1950b]. В случае нормального падения света апертуру можно рассмотреть как малый *магнитный диполь* в плоскости отверстия. Тогда коэффициент пропускания для нормально падающей плоской волны будет равен

$$T = \frac{64}{27\pi^2} (kr)^4 \propto \left(\frac{r}{\lambda_0} \right)^4. \quad (8.3)$$

Пропорциональность величине $(r/\lambda_0)^4$ предполагает слабое пропускание (которое меньше на величину порядка $(r/\lambda_0)^2$, чем в теории Кирхгофа) для субволновой апертуры. Кроме того, пропорциональность $T \propto \lambda_0^{-4}$ согласуется с теорией Рэлея, описывающей рассеяние малыми объектами. Заметим, что уравнение (8.3) справедливо в случае нормально падающего излучения как с ТЕ-, так и с ТМ-поляризацией. Если свет падает на отверстие под углом, то для описания пропускания следует учитывать дополнительный *электрический диполь* в нормальном направлении. В этом случае при ТМ-поляризации пропускается больше излучения, чем при ТЕ-поляризации [Bete, 1944].

Бете и Бувкамп использовали для теоретического анализа пропускания света через круглое отверстие в экране два приближения. Толщину проводящего экрана считали бесконечно малой, сам экран считался идеально непрозрачным в предположении идеальной проводимости. При отказе от первого допущения и рассмотрении экранов конечной толщины h решение задачи необходимо сопровождать численным моделированием. В зависимости от того, допускает ли волновод, определяемый субволновой апертурой, существование распространяющейся моды, рассматривают два режима. Модель Бете–Бувкампа применима лишь к апертурам, в которых существуют затухающие моды. Для круглого (квадратного) отверстия диаметра d в идеальном экране это условие удовлетворяется в режиме $d < 0,3\lambda_0$ или $d \approx 0,3\lambda_0$ (т. е. когда $d \leq \lambda_0/2$). Этот режим можно анализировать, используя граничные условия на периферии апертурного волновода. При этом коэффициент пропускания T экспоненциально уменьшается при увеличении h [Roberts, 1987], что объясняется туннелированием электромагнитных полей. К субволновым апертурам, поддерживающим распространяющиеся моды, используемые выше предположения не применимы; коэффициент T имеет большее значение в силу волноводных свойств апертуры. Типичными примерами *волноводных апертур* являются круглые отверстия с диаметрами, превышающими пороговое значение [de Abajo, 2002], хорошо также известные одномерные щели (с ТЕМ-модой без порога), кольцеобразные апертуры [Baida and van Labeke, 2002] и С-образные апертуры [Shi et al., 2003].

Помимо конечной толщины экрана, при обсуждении свойств пропускания реальных апертур следует учитывать конечную проводимость металлического экрана. Для оптически тонких пленок экран не является идеально непрозрачным, так что приближения теории Бете–Бувкампа не оправданы. С другой стороны, оптически толстая пленка реального металла удовлетворяет условию непрозрачности в том случае, если значение h имеет порядок толщины нескольких скин-слоев, что препятствует туннельному переходу

излучения сквозь экран. Если апертуры удовлетворяют этому условию, то локализованные поверхностные плазмоны оказывают существенное влияние на пропускание света [Degiron et al., 2004]. В дальнейшем мы рассмотрим этот вопрос более подробно, после того как исследуем роль поверхностных плазмон-поляритонов, возбуждаемых путем фазовой синхронизации на входной стороне экрана, и процессы туннелирования.

8.2. Прохождение света сквозь субволновые апертуры

Пропускание света сквозь субволновое отверстие в форме круга или квадрата, которое не поддерживает распространяющуюся моду, можно существенно усилить за счет структурирования экрана регулярной периодической решеткой. Тогда с помощью решеточного ввода излучения можно возбуждать поверхностные плазмон-поляритоны, которые могут способствовать усилению светового поля на апертуре. После прохождения света сквозь отверстие энергия поля с помощью поверхностных плазмон-поляритонов рассеивается с другой стороны экрана в дальнее поле.

Условие фазовой синхронизации, накладываемое решеткой, дает вполне определенное структурирование спектра пропускания $T(\lambda_0)$ системы: с пиками для длин волны, при которых возбуждаются поверхностные плазмон-поляритоны. При таких длинах волны может выполняться условие $T > 1$, и, значит, больше количество энергии может пройти сквозь апертуру, чем падает на ее площадь. Объясняется это тем, что падающий на металлический экран свет проходит сквозь отверстие через возбуждение поверхностных плазмон-поляритонов. Впервые это *необычное пропускания света* было продемонстрировано Эббесеном и его коллегами, которые использовали тонкий серебряный экран с квадратным массивом круглых апертур [Ebbesen et al., 1998].

В качестве типичного примера на рис. 8.2 показан спектр пропускания для света, нормально падающего на серебряный экран толщиной $t = 200$ нм, который перфорирован квадратной решеткой круглых отверстий диаметра $d = 150$ нм; период решетки составляет $a_0 = 900$ нм. Если не обращать внимание на острый пик в ультрафиолетовом диапазоне, видимый лишь для очень тонких пленок, в спектре можно различить ряд относительно широких пиков, два из которых соответствуют длинам волны, превышающим период решетки a_0 . Простой дифракционный анализ без учета влияния поверхностных мод никак не объясняет происхождение этих пиков. Тот факт, что $T > 1$, предполагает пропускание света посредством поверхностных плазмон-поляритонов, которые возбуждаются решеточным вводом

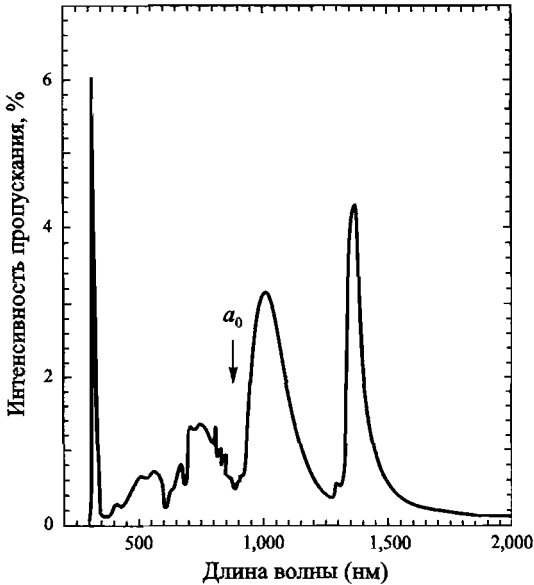


Рис. 8.2. Спектр нормального пропускания света для серебристого экрана, перфорированного квадратной матрицей отверстий диаметром $d = 150$ нм; период решетки равен $a_0 = 900$ нм. Толщина экрана 200 нм. Печатается с разрешения издательства Macmillan Publishers Ltd: Nature [Ebbesen et al., 1998], © 1998

на периодической апертурной решетке. Как следствие, даже свет, падающий на непрозрачные области между отверстиями, может проходить на другую сторону экрана с помощью поверхностных плазмон-поляритонов. Отметим, однако, что экспериментально крайне сложно определить с достаточной точностью усиление пропускания из-за проблемы нормировки: чтобы вычислить пропускание по формуле Бете (8.3), следует очень точно определить размеры отверстия, так как величина $T \propto r^4$ степенным образом зависит от радиуса апертуры. Заметим, в наших ранних исследованиях нормально падающий свет не был поляризован. Следует указать также, что в силу квадратной симметрии массива отверстий спектры пропускания для ТМ- и ТЕ-поляризации на самом деле идентичны [Varnes et al., 2004].

Исследуя зависимость положений пиков от угла падения света, можно наглядно отобразить дисперсионные соотношения для волн, участвующих в процессе пропускания. Пример изображен на рис. 8.3, как видно на рисунке, четко различима типичная структура дисперсионного соотноше-

ния (2.14), в котором фигурирует решеточный вектор $G = 2\pi/a_0$. Пересечение дисперсионных кривых с осью $k_x = 0$ определяет точки фазовой синхронизации для нормального падения возбуждающего светового луча и, следовательно, положение максимумов пропускания на рис. 8.2.

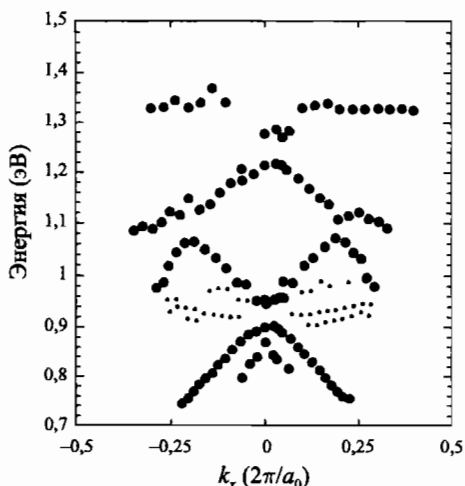


Рис. 8.3. Дисперсионные соотношения для поверхностных плазмон-поляритонов, возбуждаемых с помощью решеточного ввода и движущихся в направлении [10] апертурного массива, наподобие того, что изображено на рис. 8.2, для разных значений угла падения (жирные точки). Печатается с разрешения издательства Macmillan Publishers Ltd: Nature [Ebbesen et al., 1998], © 1998

Наблюдаемую структуру спектра пропускания $T(\lambda)$ можно объяснить, если допустить решеточное возбуждение поверхностных плазмон-поляритонов при условии фазовой синхронизации:

$$\beta = k_x \pm nG_x \pm mG_y = k_0 \sin \theta \pm (n + m) \frac{2\pi}{a_0}, \quad (8.4)$$

где β — постоянная распространения поверхностных плазмон-поляритонов. Если допустить, что с помощью квадратной решетки осуществляется фазовая синхронизация, то, объединяя (8.4) и (2.14), легко доказать, что для нормально падающего света максимумы пропускания соответствуют длинам волн, удовлетворяющим уравнению

$$\lambda_{\text{SPP}}(n, m) = \frac{n_{\text{SPP}} a_0}{\sqrt{n^2 + m^2}} \quad (8.5)$$

[Ghaemi et al., 1998]. Здесь $n_{\text{SPP}} = \beta c/\omega$ — эффективный показатель поверхностных плазмон-поляритонов, вычисленный по формуле (2.14) для единственной границы раздела между металлом и диэлектриком. Такое упрощенное описание часто служит хорошим первым приближением.

Поскольку фазовая синхронизация играет ключевую роль в усилении пропускания, которое обусловлено туннелированием поверхностных плазмон-поляритонов, аналогичный процесс должен протекать и в случае одиночного отверстия, окруженного регулярным массивом бороздок в непрозрачной поверхности. Данный факт был подтвержден в последующем эксперименте с одной апертурой, углубления вокруг которой играли роль решетки для возбуждения поверхностных плазмон-поляритонов [Grupp et al., 1999]. Было доказано, что фазовая синхронизация падающего светового луча с поверхностными плазмон-поляритонами достигается не только при использовании двумерной квадратной решетки отверстий или углублений, но и при использовании экрана с одной апертурой, окруженной концентрическими окружностями. На рис. 8.4 показаны спектры пропускания для такой структуры типа «бычий глаз», состоящей из концентрических колец различной глубины h (а), а также для двумерного массива углублений (б). В обоих случаях показано усиление пропускания в сравнении со значениями, вычисленными по формуле (8.3). Для структуры типа «бычий глаз» дополнительно выполняется условие $T > 1$ при длинах волн, соответствующих фазовой синхронизации. Из рисунка 8.4а видно, что глубина h канавок, ответственных за решеточный ввод излучения, определяет эффективность ППП-связи и, стало быть, величину усиления пропускания.

Теперь более детально опишем физику процесса пропускания. Как и в случае одной апертуры в экране с неструктурированной поверхностью, пропускание сквозь апертуру в экране с регулярно структурированной поверхностью протекает за счет туннелирования, которое дает экспоненциальную зависимость интенсивности прошедшего излучения от толщины t металлического экрана. Если t имеет порядок толщины скин-слоя, то взаимодействие между поверхностными плазмон-поляритонами на фронтальной и задней границах раздела сред осуществляется тогда, когда смежные диэлектрические среды идентичны друг другу, потому что именно в этом случае возможна фазовая синхронизация. Дегирон и его коллеги доказали, что коэффициент пропускания при этом увеличивается из-за малой толщины экрана [Degiron et al., 2002]. С тех пор было проведено множество экспериментальных и численных исследований влияния геометрических параметров, таких как толщина металлической пленки [Shou et al., 2005], размер отверстия [van der Molen et al., 2004] или симметричность массива отверстий [Wang et al., 2005], на спектры пропускания. Решающим оказа-

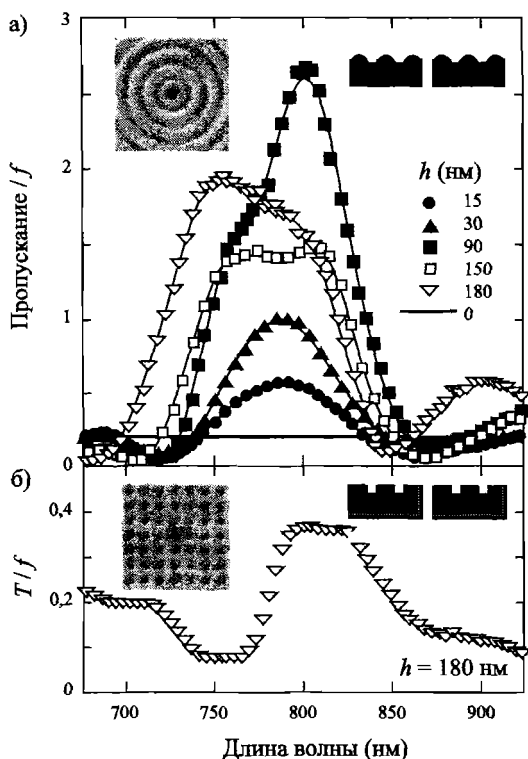


Рис. 8.4. Светопропускание сквозь одно круглое отверстие ($d = 440$ нм), окруженное концентрическими кольцами с синусоидальным поперечным сечением (а) или квадратным массивом углублений (б) в Ag/NiAg-экрane толщиной 430 нм; высота каждого углубления равна h [Thio et al., 2001]. © Optical Society of America, 2001. Используется с разрешения правообладателя

лось исследование угловой зависимости пропускания, отражения и поглощения света металлической пленкой, перфорированной массивом субволновых отверстий. В результате этого исследования, учитывающего поляризацию, была доказана роль поверхностных плазмон-поляритонов, возбуждаемых дифракцией падающего светового луча, в процессе светопропускания [Ghaemi et al., 1998; Barnes et al., 2004].

Процесс пропускания существенно усложняется, если апертура допускает существование распространяющейся моды. К таким апертурам относится одномерная щелевая структура, для которой основная ТЕМ-мода не

имеет пороговой ширины. В этом случае пропускание регулируется за счет резонансов основной моды щелевого волновода и контролируется толщиной металлической пленки. И действительно, резонансы пропускания были обнаружены в эксперименте с массивами параллельных субволновых щелей [Porto et al., 1999]. Как и в случае экстраординарного пропускания, обусловленного туннелированием, периодическое гофрирование поверхности вокруг одиночной щели, изображенной на рис. 8.5, существенно усиливает пропускание и допускает выполнение условия $T(\lambda) > 1$ в силу возбуждения поверхностных плазмон-поляритонов.

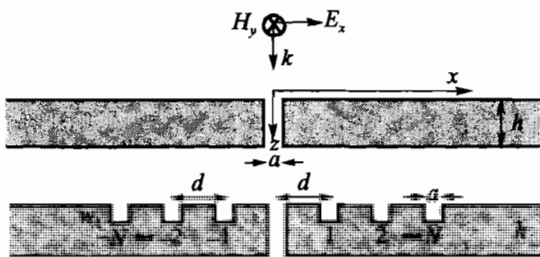


Рис. 8.5. Схематическое изображение апертурного разреза-щели в идеальном проводящем экране, окруженном и не окруженным массивом канавок по его входной стороне. Выражаем признательность Франсиско Гарсиа-Видаль из Мадридского автономного университета. Рисунок аналогичен тому, который приводится в книге [García-Vidal et al., 2003a]. © American Physical Society, 2003. Используется с разрешения правообладателя

Тот факт, что даже идеальные металлы могут поддерживать распространение поверхностных волн в виде плазмонов на структурированных границах раздела (см. главу 6), свидетельствует о явлениях усиленного пропускания и в этом пределе. Используя метод модового разложения, аналогичный рассмотренному в главе 6, с помощью которого можно описать поверхностные плазмон-поляритоны на низких частотах, Гарсиа-Видаль и его коллеги доказали, что спектр пропускания $T(\lambda)$ для щелевой апертуры, окруженной параллельными канавками, дополнительно усиливается связанными модами резонатора в канавках, частоты которых определяются глубиной канавок h . Кроме того, имеет место синфазное переизлучение из массива, регулируемое периодом d [García-Vidal et al., 2003a; Marquier et al., 2005]. На рис. 8.6 показаны результаты теоретических расчетов зависимости спектра $T(\lambda)$ от числа канавок. Из рисунка (б) следует, что лишь структурирование входной стороны экрана существенно влияет на максимумы спектра $T(\lambda)$.

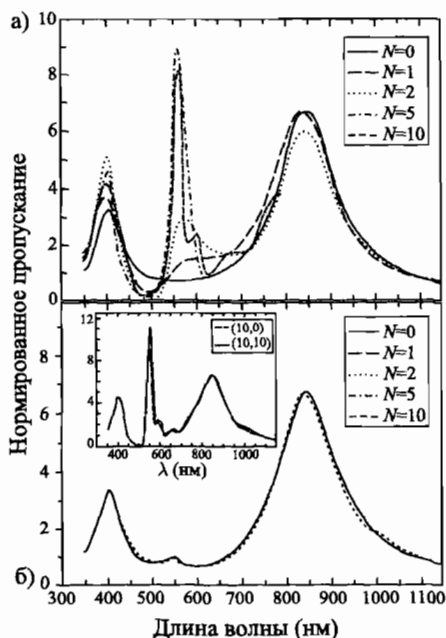


Рис. 8.6. Нормированное светопропускание $T(\lambda)$ для щелевой структуры, изображенной на рис. 8.5, при значениях $a = 40$ нм, $d = 500$ нм, $w = 350$ нм и глубине канавки $h = 100$ нм. На входной (а) или выходной (б) стороне экрана нанесено $2N$ канавок. Усиление пропускания происходит лишь в случае (а), т. е. тогда, когда канавки нанесены на входную сторону экрана, причем существенное усиление достигается при малом количестве канавок. Нанесение канавок на внешнюю сторону экрана не дает ни картины (б), ни существенного изменения (см. рисунок-вкладку в б) величины $T(\lambda)$. Выражаем признательность Франсиско Гарсиа-Видалю из Мадридского автономного университета. Рисунок аналогичен тому, который приводится в книге [García-Vidal et al., 2003a]. © American Physical Society, 2003. Используется с разрешения правообладателя

Для геометрических параметров, использованных в расчетах, можно выделить два максимума пропускания, соответствующих 400 нм и 850 нм, которые не изменяются из-за структурирования поверхности. Эти максимумы соответствуют резонансам щелевого волновода. Высокие и острые пики при $\lambda = 560$ нм обусловлены появлением мод резонатора в канавках и синфазным переизлучением в канавках при увеличении числа канавок. Это синфазное переизлучение протекает при посредничестве возбужден-

ных поверхностных плазмонов. Основные результаты этого исследования были независимо подтверждены на базе другого подхода, основанного на теории рассеяния из квантовой механики [Borisov et al., 2005]. Более того, регулируя фазу переизлучения, можно выборочно подавлять пропускание, что и было продемонстрировано в эксперименте с подходящими фазовыми решетками в терагерцовом режиме [Cao et al., 2005]. Недавние исследования доказали, что даже одномерный массив субволновых апертур приводит ко многим результатам, свойственным экспериментам с двумерным структурированием металлической пленки [Bravo-Abad et al., 2004a]. Заметим, что экстраординарное пропускание, обусловленное возбуждением поверхностных плазмон-поляритонов, наблюдается не только в опытах с видимым светом и металлическими экранами, но и при использовании сильнолегированных полупроводников и полимерных пленок на терагерцовых частотах [Matsui et al., 2006].

Если структурирование входной стороны апертурного экрана определяет спектральную зависимость $T(\lambda)$ процесса пропускания, то структурирование выходной стороны экрана позволяет регулировать переизлучение прошедшего света; более подробно поговорим об этом в следующем разделе.

8.3. Направленное излучение за счет структурирования выходной стороны экрана

Выше мы показали, что прохождение света сквозь субволновую апертуру, диаметр которой меньше критического значения, можно существенно усилить путем структурирования входной стороны экрана, которое дает фазовую синхронизацию с поверхностными плазмон-поляритонами. Аналогичным образом можно контролировать излучение на выходной стороне экрана, опять же путем ее структурирования. Если наложить на эту сторону регулярную решетку, то можно, не усиливая спектр $T(\lambda)$, достичь направленного излучения с малой расходимостью выходного луча. Первыми это продемонстрировали Лежец и его коллеги [Lezec et al., 2002]. Таким образом, структурирование входной и выходной сторон экрана позволяет и усилить пропускание, и добиться направленного излучения.

На рис. 8.7 и 8.8 показаны примеры такого явления для круглой апертуры, окруженной концентрическими канавками, и щели, окруженной регулярным массивом параллельных канавок. Пленка структурирована с двух сторон. Положение и амплитуда максимумов пропускания $T(\lambda_0)$ регулируются фазовой синхронизацией, с помощью структурирования входной стороны пленки, а уширение и направление выходного луча регулируются

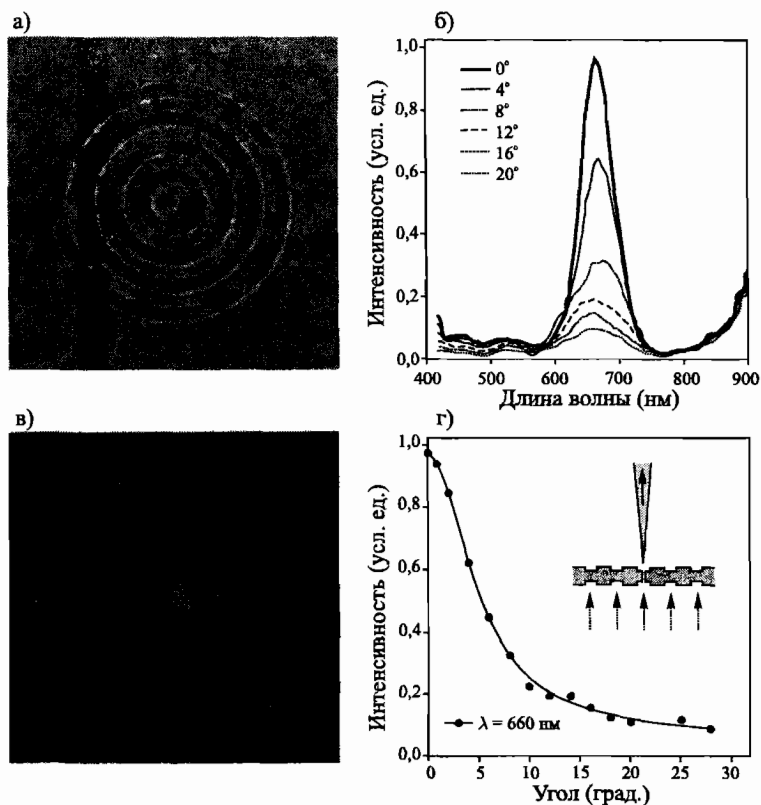


Рис. 8.7. (а) Полученное в режиме фокусируемого луча (FIB) изображение структуры типа «бычий глаз», расположенной вокруг круглого субволнового отверстия в толстой серебряной пленке. (б) Спектры пропускания для разных значений угла сбора, демонстрирующие малую расходимость выходного луча (канавки глубиной 60 нм расположены на расстоянии 600 нм друг от друга; диаметр отверстия 300 нм). (в) Оптическое изображение направленного излучения при длине волны, характерной для максимального пропускания. (г) Угловое распределение интенсивности излучения при длине волны, характерной для максимального пропускания [Lezec et al., 2002]. © AAAS, 2002. Используется с разрешения правообладателя

структурированием выходной стороны пленки. Мы наблюдаем направленное излучение с угловой расходимостью в $\pm 3^\circ$. Это явление можно объяснить, допустив, что поверхностные плазмон-поляритоны продвигаются из

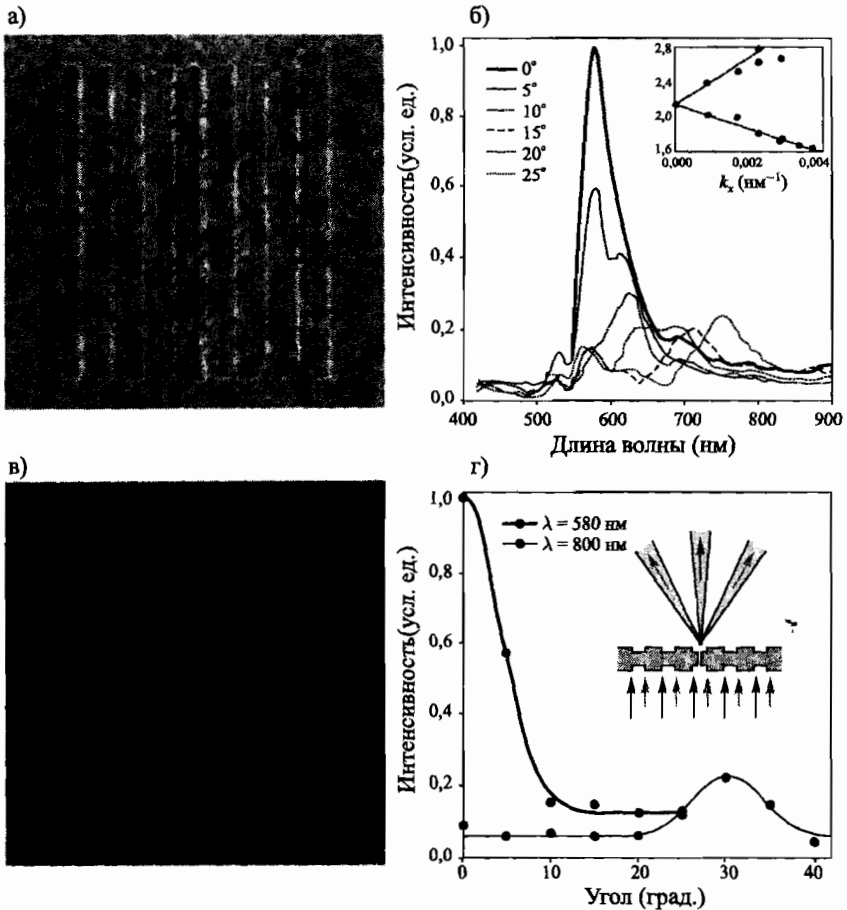


Рис. 8.8. FIB-изображение (а) и спектр пропускания для различных значений угла сбора (б) одиночной субволновой щели, окруженной параллельными канавками, нарезанными в серебряной пленке толщиной 300 нм (ширина щели 40 нм, длина щели 4400 нм, периодичность канавок 500 нм, глубина каждой канавки 60 нм). На рисунке (б) также показана дисперсионная кривая для периодической структуры (черные точки) и положение спектральных пиков (серые точки). (в) Оптическое изображение. (г) Угловое распределение интенсивности излучения при двух выбранных длинах волны [Lezec et al., 2002]. © AAAS, 2002. Используется с разрешения правообладателя

апертуры по экрану к канавкам и создают направленное излучение, которое определяется периодом решетки. Особенность в том, что световые волны с различными длинами можно излучать под разными углами (рис. 8.8г), реализуя фильтрацию. В рамках исследований, результаты которых приводятся на этих двух рисунках, период решетки составлял $d = 600$ нм или $d = 500$ нм соответственно, а глубина канавок составляла $h = 60$ нм. Структурирование серебряной пленки толщиной 300 нм было выполнено по технологии ионного травления.

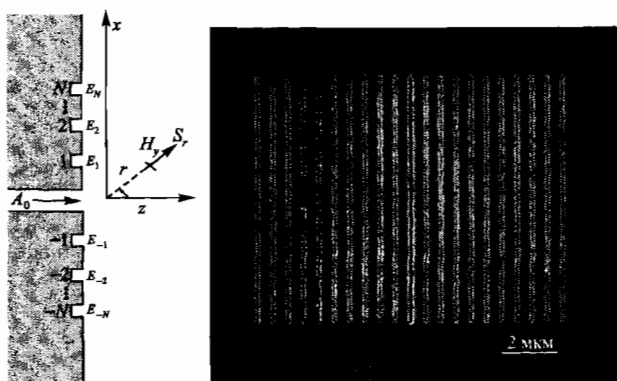


Рис. 8.9. Схематичное (а) и FIB-изображение (б) выходной поверхности экрана с одним отверстием в виде щели, окруженной с каждой стороны экрана 10 параллельными канавками (ширина щели 40 нм, периодичность канавок 500 нм, глубина канавок 100 нм). Выражаем признательность Франсиско Гарсиа-Видаля из Мадридского автономного университета. Рисунок аналогичен тому, который приводится в книге [Martin-Moreno et al., 2003]. © American Physical Society, 2003. Используется с разрешения правообладателя

Интуитивное представление направленного излучения подтвердилось теоретическим анализом профиля излучения для щелевой апертуры, окруженной массивом параллельных канавок, наподобие изображенной на рис. 8.8. Более подробно геометрия этой системы описана в заголовке рисунка 8.9. Используя модовое разложение полей вблизи щели и в области канавок аналогично тому, как это делалось в главе 6, Мартин-Морено и его коллеги доказали, что излучение обусловлено сильной связью между локализованными канавочными модами и интерференцией их дифрагированных волновых профилей [Martin-Moreno et al., 2003]. Примерный профиль интенсивности $I(\theta)$ прошедшего луча, найденный по этой модели, показан на рис. 8.10. Аналогичные расчеты для конкретных параметров структуры,

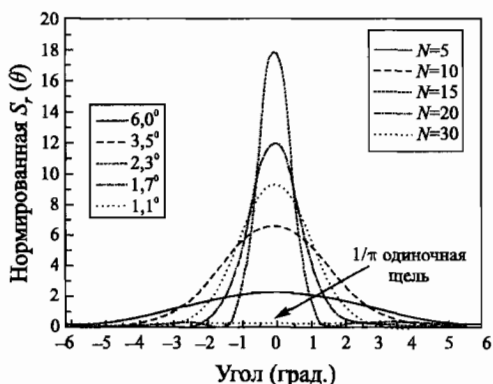


Рис. 8.10. Теоретические профили интенсивности (угловое распределение интенсивности) луча, проходящего в прямом направлении через щель, изображенную на рис. 8.9, для разного количества $2N$ канавок и геометрических параметров, аналогичных использованным на рис. 8.8. На рисунке также показана угловая расходимость прошедшего луча для каждого значения N . Для разных N подгонялась глубина канавок, чтобы общие интенсивности прошедшего излучения оказались одинаковыми. Выражаем признательность Франсиско Гарсиа-Видаль из Мадридского автономного университета. Рисунок аналогичен тому, который приводится в книге [Martin-Moreno et al., 2003]. © American Physical Society, 2003. Исполняется с разрешения правообладателя

изображенной на рис. 8.8, выявляют хорошее соответствие между опытом и теорией как в случае узкого светового луча, распространяющегося в прямом направлении, так и в случае направленного излучения под некоторым углом. Кроме того, теоретические расчеты подтверждают, что узкий профиль излучения достигается уже при малом количестве канавок ($N \approx 10$).

Итак, по желанию мы можем регулировать угловое распределение интенсивности путем структурирования входной стороны экрана. Более того, было выдвинуто следующее предположение: при подходящих длинах волн мы могли бы сфокусировать луч, т. е. эффективным образом сделать из экрана плоскую селективную линзу с избирательностью по длине волны [Garcia-Vidal et al., 2003b].

8.4. Локализованные поверхностные плазмоны и светопропускание сквозь одиночные апертуры

При рассмотрении теории Бете-Бувкампа указывалось, что она связана с определенными ограничениями: чтобы корректно описать пропуск-

ные свойства одиночной апертуры в оптически толстой (и, следовательно, непрозрачной) металлической пленке, следует учитывать конечную проводимость реального металла. Проникание падающего луча внутрь экрана ведет к возбуждению *локализованных* поверхностных плазмонов на периферии апертуры [Degiron et al., 2004] подобно тому, как в пустотах металлической пленки возникают локализованные моды (см. главу 5). Можно было бы ожидать, что рассматривая апертуры как локальные дефекты в толстой металлической поверхности, мы будем также наблюдать распространение поверхностных плазмон-поляритонов (см. главу 3). Однако явление возбуждения поверхностных плазмон-поляритонов одиночным апертурным дефектом еще не изучено достаточно хорошо.

Возбуждение локализованных поверхностных плазмонов по краям одиночной субволновой апертуры имеет два важных следствия, влияющих на спектр пропускания $T(\lambda)$. Ясно, что в силу конечного проникания полей внутрь апертуры ее *эффективный диаметр* увеличивается. Это, в свою очередь, ведет к значительному росту критической длины волны λ_{\max} основной волноводной моды: она становится сравнима с физическим диаметром отверстия. Аналитические и численные исследования показали, что величина λ_{\max} может возрасти на 41 % [Gordon and Brolo, 2005], и это необходимо учитывать при исследовании апертур с диаметром, чуть меньшим предельного диаметра для идеально проводящего экрана. В частности, это нужно для корректной нормировки коэффициента пропускания. Кроме того, теоретические исследования пропускной способности круглого отверстия в металлическом экране, которая описывается диэлектрической функцией для свободных электронов (такой как (1.20)), показывают, что распространяющаяся мода существует при частоте ниже плазменной даже в случае произвольно малого отверстия [Shin et al., 2005; Webb and Li, 2006]. Влияние этой моды на пропускные свойства субволновых круглых отверстий еще не подтверждены экспериментально.

Второй важный момент, который мы должны рассмотреть, это зависимость спектрального положения моды локализованных поверхностных плазмонов от размеров и геометрической формы отверстия. По аналогии с обсуждением в главе 5 локализованных мод в металлических наночастицах и нанопустотах можно ожидать существенного усиления поля по краям апертуры, что приведет к усилению пропускания при длине волны возбуждения локализованной моды. Лишь недавно удалось провести точный анализ этого явления, сделав в свободно стоящей серебряной пленке одиночное круглое отверстие по технологии ионного травления (рис. 8.11а) [Degiron et al., 2004]. Для относительно тонкой (но при этой непрозрачной) металлической пленки, допускающей сильное туннелирование сквозь

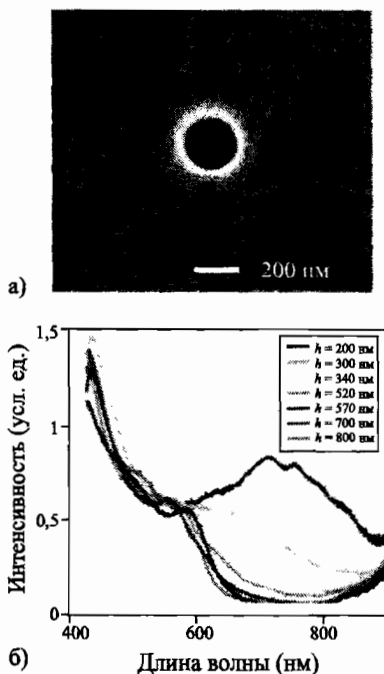


Рис. 8.11. Светопропускание сквозь одиночную субволновую дыру в свободно стоящей серебряной пленке (а). Пик пропускания для малого экрана толщиной h (б) объясняется локализованными поверхностными плазмонами [Degiron et al., 2004]. © Elsevier, 2004. Используется с разрешения правообладателя

апертуру, наблюдается пик пропускания (рис. 8.11б), который обусловлен возбуждением локализованной моды. Пространственная структура и спектральные параметры локализованной плазмонной моды также могут быть получены путем возбуждения электронным пучком высокой энергии. На рис. 8.12 показано индуцированное электронным пучком световое излучение (а) и соответствующий спектр (б), который достаточно хорошо согласуется со спектром $T(\lambda)$. Стоит заметить, что в рамках этого же исследования были замечены первые признаки эффектов остронаправленности луча, которые обусловлены существованием локализованной моды на выходной стороне экрана.

Недавно исследователи выдвинули предположение, что локализованные моды влияют на пропускание света сквозь периодические массивы субволновых апертур [Degiron and Ebbesen, 2005]. Однако распространение

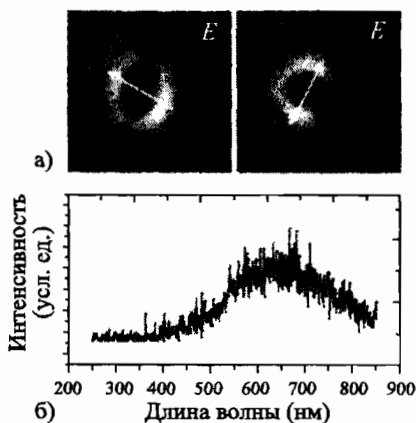


Рис. 8.12. Индуцированное пучком электронов излучение света, усиленное поверхностными плазмонами. (а) Катодолуминесцентная картина для двух разных поляризаций. (б) Соответствующий спектр [Degiron et al., 2004]. © Elsevier, 2004. Используется с разрешения правообладателя

поверхностных плазмон-поляритонов, которое мы обсуждали выше, имеет здесь гораздо большее значение, тогда как локализованные моды вносят лишь незначительные изменения [de Abajo et al., 2006; Chang et al., 2005].

Гарсиа-Видаль и его коллеги провели аналогичный анализ резонансов пропускания для прямоугольных одиночных апертур с разными соотношениями сторон a_y/z_x (рис. 8.13а) [Garcia-Vidal et al., 2005b]. Важное отличие от экспериментальной работы [Degiron et al., 2005] состоит в том, что металлический экран был смоделирован как идеальный проводник. Таким образом, возбуждение моды локализованных поверхностных плазмон-Гарсиа-Видаль и его коллеги исключили граничными условиями на периферии отверстия подобно тому, как мы это делали при моделировании идеального проводника в режиме низких частот (см. главу 6). Модовый анализ полей в полупространствах над экраном и ниже его, а также в апертурной области глубиной h выявил резонанс в спектре $T(\lambda)$ (рис. 8.13б) вблизи порогового значения. Этот резонанс дает усиление пропускания с ростом отношения a_y/a_x и частичное диэлектрическое заполнение дыры. Как и в рамках оптического исследования, это усиление обусловлено резонансом (рис. 8.14), природа которого никак не связана с поверхностными плазмонами. Аналогичное исследование [Bravo-Abad et al., 2004b] выявило богатую физику, лежащую в основе процесса пропускания в режиме перехода от затухающей моды к распространяющейся моде.

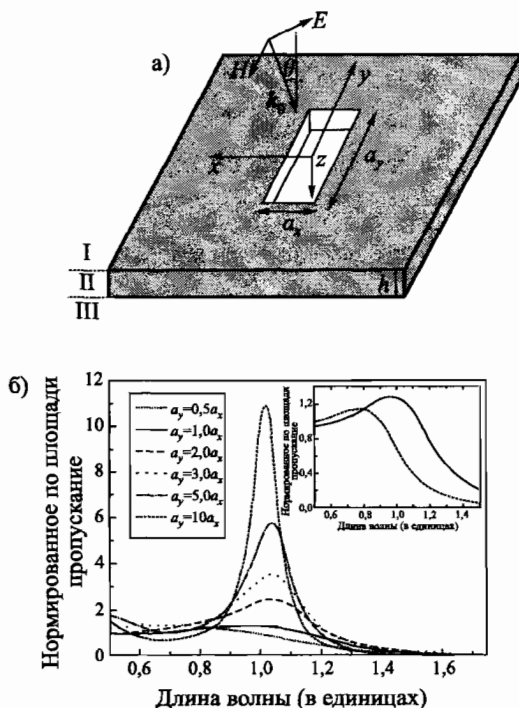


Рис. 8.13. Светопропускание сквозь одиночную прямоугольную апертуру в идеально проводящем экране. (а) Геометрия. (б) Нормированное пропускание T в зависимости от длины волны для нормально падающей плоской волны, сталкивающейся с апертурами, имеющими разное соотношение сторон a_y/a_x . Толщина металла равна $h = a_y/3$. На рисунке-вкладке сравниваются пропускания для одиночного круглого и одиночного прямоугольного отверстий. Выражаем признательность Франсиско Гарсиа-Видаль из Мадридского автономного университета. Рисунок аналогичен тому, который приводится в книге [García-Vidal et al., 2005b]. © American Physical Society, 2005. Используется с разрешения правообладателя

В завершение раздела отметим, что туннелирование поля через одиночную апертуру, обусловленное поверхностными плазмон-поляритонами, можно улучшить за счет усиления связи между входной и выходной поверхностями экрана, например, за счет введения в металлический экран многослойной структуры [Chan et al., 2006; Zayats and Smolyaninov, 2006] или путем заполнения отверстия диэлектриком с высоким показателем преломления [Oikkonen et al., 2005].

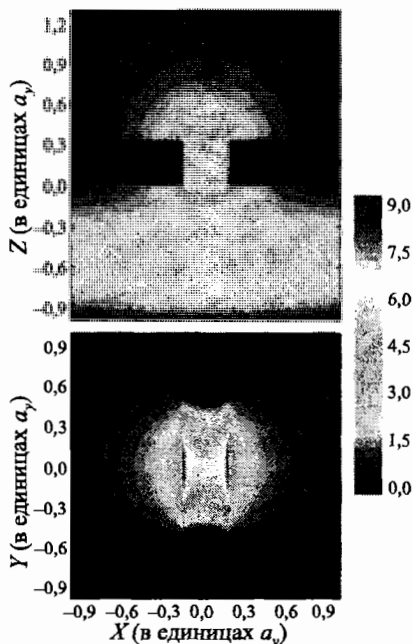


Рис. 8.14. Усиление электрического поля $|E|$ относительно поля падающего излучения для прямоугольной апертуры, изображенной на рис. 8.13, с соотношением сторон $a_y/a_x = 3$ и $h = a_y/3$ при резонансной длине волны. Сверху показан срез, проходящий через центр апертуры, а снизу показано распределение поля у входной поверхности [García-Vidal et al., 2005b]. © American Physical Society, 2005. Используется с разрешения правообладателя

8.5. Практические применения экстраординарного пропускания

Усиленное светопропускание с избирательностью по частоте (сквозь апертурные массивы и даже одиночные апертуры посредством поверхностных плазмон-поляритонов, локализованных поверхностных плазмонов или резонансов апертурного волновода) интересно не только с теоретической точки зрения, но и с точки зрения практического применения. В ряде теоретических и недавних экспериментальных исследований удалось вынести пользу из скрытых полей, существующих при максимумах спектра $T(\lambda)$, в опыте по оптическому переключению с использованием подходящего

нелинейного заполняющего вещества [Porto et al., 2004] и в опытах по усилению флуоресцентного излучения молекул, локализованных внутри апертуры [Rigneault et al., 2005]. Цель нелинейного исследования — продемонстрировать полностью оптическое, электрическое или тепловое переключение процесса пропускания. Физические принципы, лежащие в основе усиления ближнеполюсного излучения металлических структур, будут рассматриваться в главе 9.

Кроме того, в ближнеполюсной оптике огромный интерес вызывает явление усиления светопропускания сквозь наноразмерные апертуры. Не так давно модель Бете–Бувкампа была адаптирована к конической геометрии обычного оптического зонда в микроскопии ближнего поля [Drezet et al., 2001]. Несмотря на это, до сих пор не ясно, как можно применить законы планарной геометрии к конструированию более эффективных ближнеполюсных зондов.

Совсем недавно Шутен и его коллеги продемонстрировали, к чему ведет усиленное плазмонами пропускание в классическом эксперименте Юнга по дифракции света двойной щелью [Schouten et al., 2005]. Отметим также, что рассмотренные выше принципы можно применить к прогнозированию резонансного переноса холодных атомов через субволновые апертуры в экране, поддерживающем распространение волн материи [Moreno et al., 2005].

8.6. Светопропускание сквозь неперфорированную пленку

В конце главы кратко рассмотрим вопрос светопропускания, обусловленного поверхностными плазмонами, сквозь металлическую пленку без отверстий. В главе 2 мы говорили, как происходит взаимодействие между поверхностными плазмон-поляритонами, существующими на верхней и нижней границах раздела, для металлической пленки толщиной, меньшей толщины скин-слоя. Напомним, что это взаимодействие ведет к образованию связанных мод и мод утечки поверхностных плазмон-поляритонов. В случае бесконечно широких тонких металлических слоев, расположенных внутри симметричной диэлектрической массы, каждая из двух связанных мод имеет свою четность и по-иному ведет себя в отношении ограничения поля при толщине слоя, стремящейся к нулю. Если обе поверхности дополнительно модулировать решеточной структурой, то по одну сторону границы их раздела под действием прямых световых волн можно возбудить поверхностные плазмон-поляритоны, которые проходят сквозь пленку и переизлучаются с другой стороны в том случае, если период решетки и высота канавок с обеих сторон одинаковы. При таком светопропускании сквозь

гофрированную неперфорированную металлическую пленку в канавках решетки на входной и выходной сторонах накапливается много энергии [Tan et al., 2000].

Читатель может наивно предположить, что эффективность пропускания монотонно возрастает с уменьшением толщины металлической пленки, поскольку в этом случае усиливается взаимодействие между модами поверхностных плазмон-поляритонов на двух границах раздела. На самом деле, однако, для металлических пленок, нанесенных поверх подложки с высоким показателем преломления, например поверх призмы, коэффициент пропускания может достигать максимального значения при конкретной толщине пленке $d_{\text{крит}}$. Это явление обуславливается двумя конкурирующими эффектами: с одной стороны, увеличивается поглощение, а с другой стороны — при росте d усиливается оптическое поле. В результате оказывается, что снижение величины просачивающегося в призму излучения больше прироста поглощения. Это и было продемонстрировано в опыте с прямым освещением, решеточным вводом излучения [Giannattasio et al., 2004] и локальным возбуждением при использовании верхнего слоя, легированного флуоресцентными красителями [Winter and Barnes, 2006].

Хупер и Самблес экспериментально доказали, что если решеточные структуры по обеим сторонам пленки не совпадают, то физика светопропускания изменяется и усложняется [Hooper and Sambles, 2004a]. При определенных условиях наблюдается экстраординарное пропускание, подобное тому, которое характерно для металлических пленок, перфорированных отверстиями. Были предложены способы, позволяющие усилить внешнюю эффективность, скажем, органических диодов, испускающих свет [Wedge et al., 2004]. Аналогичные явления наблюдаются в двумерно гофрированных металлических пленках [Bonod et al., 2003; Bai et al., 2005].

Во всех упомянутых исследованиях внимание фиксировалось на связанных модах поверхностных плазмон-поляритонов в трехслойных структурах (диэлектрик/металл/диэлектрик). Усиление пропускания происходит и за счет связанной моды в противоположной структуре металл/диэлектрик/металл: сильно локализованная мода возбуждается в промежутке между двумя металлическими поверхностями. В рамках недавних исследований с получением ближнепольных изображений подтвердилось существование этих эффектов [Bakker et al., 2004]. В главе 11 мы вернемся к обсуждению светопропускания сквозь толстую металлическую пленку в контексте получения изображений.

ГЛАВА 9

Излучение и нелинейность

На сегодняшний день наиболее эффективно плазмоника применяется в спектроскопии *поверхностного комбинационного рассеяния* (SERS). Данный вид рассеяния представляет собой спонтанное комбинационное рассеяние на молекулах, которое сопровождается возбуждением локализованных световых полей в ближней зоне металлических наноструктур. Используя химически неоднородные серебряные поверхности, было зафиксировано явление комбинационного рассеяния одиночных молекул [Клепп et al., 1997; Nie and Emery, 1997], которое сопровождалось видимым увеличением сечения рассеяния в более чем 10^{14} раз. Предположительно, это увеличение происходит главным образом благодаря резонансам локализованных поверхностных плазмонов с усилением поля в местах контакта металлических наночастиц. Эти локализованные поля, называемые *горячими зонами*, усиливают флуоресцентное излучение. Правильное управление горячими зонами — главное направление, лежащее в основе проектирования наночастичных систем с настраиваемыми оптическими свойствами.

В данной главе основное внимание фокусируется на фундаментальных принципах и геометрии усиленного поверхностью комбинационного рассеяния, обусловленного локализованными плазмонными модами в металлических наноструктурах. Будет сделан обзор теоретических моделей по вычислениям рассеяния и рассмотрена резонансная модель для SERS, которая описывает общие принципы и правила масштабирования для взаимодействия излучения с веществом. Речь также пойдет о соответствующем усилении флуоресцентного излучения от источников, расположенных в ближней зоне металлических наноструктур, и процессах гашения, обусловленных безызлучательными переходами. В конце главы рассматривается усиление собственной люминесценции наночастиц из благородных металлов и нелинейные процессы.

9.1. Основы SERS

Рамановский эффект (для молекулы) описывает неупругое рассеяние фотона на молекуле, связанное с основной колебательной или вращатель-

ной модой молекулы (рис. 9.1a). Из-за энергообмена между участниками рассеяния энергия $h\nu_L$ падающего фотона изменяется на величину, равную энергии колебания $h\nu_M$. Эти сдвиги по энергии могут происходить в обоих направлениях, все зависит от того, находится молекула в своем колебательном основном состоянии или в возбужденном состоянии. В первом случае фотон теряет энергию за счет возбуждения колебательной моды (стоксово рассеяние). Во втором случае возможны потери энергии за счет снятия возбуждения колебательной моды (антистоксово рассеяние). Частоты этих двух полос комбинационного рассеяния равны

$$\nu_S = \nu_L - \nu_M, \quad (9.1a)$$

$$\nu_{aS} = \nu_L + \nu_M. \quad (9.1b)$$

На рис. 9.1b сравнивается обычная флуоресценция со спектром комбинационного рассеяния, и, как следует из рисунка, спектр флуоресценции шире рамановского спектра в силу неупругой релаксации электронов до нижнего края возбужденного уровня (см. схематичное изображение). Комбинационные переходы более резкие, поэтому мы и можем проводить тщательный анализ колебаний молекулы. В общем случае фотоны, участвующие в комбинационных переходах, не колеблются в резонансе с молекулой, возбуждение происходит через виртуальные уровни. Фотоны не поглощаются и не излучаются, так что мы имеем дело с чистым процессом рассеяния. Это утверждение справедливо и в том случае, когда налетающий фотон находится в резонансе с электронным переходом. Резонансное комбинационное рассеяние сильнее обычного комбинационного рассеяния, но менее эффективно, чем флуоресцентные переходы. Сечения комбинационного рассеяния σ_{RS} , как правило, на десять и более порядков меньше сечений флуоресценции: 10^{-31} см²/молекула $\leq \sigma_{RS} \leq 10^{-29}$ см²/молекула, в зависимости от того, является рассеяние резонансным или нет.

Описываемое здесь комбинационное рассеяние является *спонтанным* (в отличие от индуцированного) и потому относится к линейному процессу: общая мощность неупруго рассеянного пучка линейно изменяется с изменением интенсивности падающего пучка возбуждения. Далее будем рассматривать стоксов процесс, для которого мощность рассеянного пучка равна

$$P_S(\nu_S) = N\sigma_{RS}I(\nu_L), \quad (9.2)$$

где N — количество стокс-активных рассеивателей в пределах пятна возбуждения, σ_{RS} — поперечное сечение рассеяния, а $I(\nu_L)$ — интенсивность пучка возбуждения.

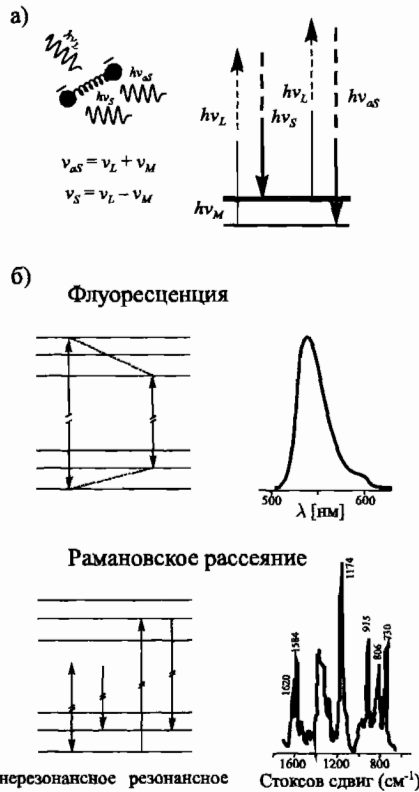


Рис. 9.1. Схема комбинационного рассеяния и флуоресценции. (а) Генерация стоксова и антистоксова излучения актами рассеяния. (б) Флуоресценция и комбинационное рассеяние на схемах энергетических уровней и репрезентативных спектрах [Kneipp et al., 2002]. © Institute of Physics, 2002. Используется с разрешения правообладателя

Усиленное поверхностью комбинационное рассеяние описывает усиление этого процесса, сопровождающееся размещением раман-активных молекул в ближней зоне металлической наноструктуры. Наноструктура может состоять из металлических коллоидов или особым образом спроектированных совокупностей наночастиц, или шероховатой поверхности. Усиление P_S обусловлено двумя эффектами. К первому эффекту относится модификация сечения комбинационного рассеяния σ_{RS} вследствие изменения среды молекулы. Сечение увеличивается до величины $\sigma_{SERS} > \sigma_{RS}$, которая

часто называется *химическим*, или *электронным*, вкладом в рамановское усиление. Согласно теоретическому моделированию, максимальное усиление, обусловленное изменением сечения, имеет порядок 100.

Второй фактор, гораздо сильнее влияющий на общее увеличение P_S , это усиленное электромагнитное поле, обусловленное возбуждениями *локализованных поверхностных плазмонов* и уплотнением линий электрического поля (*громоотводный эффект*) на границе раздела металлов [Kerker et al., 1980; Gersten and Nitzan, 1980; Weitz et al., 1983]. Как следствие, усиливаются поля падающего и излученного света, и это усиление выражается коэффициентом $L(\nu) = |\mathbf{E}_{\text{loc}}(\nu)|/|\mathbf{E}_0|$, где $|\mathbf{E}_{\text{loc}}|$ — амплитуда локального поля на активном участке комбинационного рассеяния. Величина $L(\nu)$ называется коэффициентом *электромагнитного* усиления. Общая мощность стокаса луча в условиях усиленного поверхностью комбинационного рассеяния равна

$$P_S(\nu_S) = N\sigma_{\text{SERS}}L(\nu_L)^2L(\nu_S)^2I(\nu_L). \quad (9.3)$$

Поскольку в общем случае разность частот $\Delta\nu = \nu_L - \nu_S$ между падающим и рассеянным фотонами гораздо меньше ширины спектральной линии Γ локализованной плазмонной моды, получаем $|L(\nu_L)| \approx |L(\nu_S)|$ и приходим к важному заключению, что *электромагнитный вклад в общее усиление SERS пропорционален коэффициенту полевого усиления в четвертой степени*. Усиление мощности стокаса луча по традиции записывается выражением

$$R = \frac{|\mathbf{E}_{\text{loc}}|^4}{|\mathbf{E}_0|^4} \quad (9.4)$$

[Kerker et al., 1980]. Не будем углубляться в рассмотрение элементарных принципов SERS, а сконцентрируемся на анализе коэффициента полевого усиления $L(\nu)$. Более подробно об усиленном поверхностью комбинационном рассеянии читайте в обзорных статьях [Kneipp et al., 2002; Moskovits, 1985].

Физический базис электромагнитного усиления имеет две основные составляющие: усиление вследствие резонансного возбуждения локализованных поверхностных плазмонов в металлических наноструктурах и громоотводный эффект [Gersten and Nitzan, 1980; Kerker et al., 1980; Liao and Wokaun, 1982]. Из этих двух явлений лишь плазмонный резонанс сильно зависит от частоты; эффект громоотвода — чисто геометрическое явление уплотнения полевых линий, сопровождающееся усилением вблизи острых металлических элементов. Следовательно, можно записать $L(\nu) = L_{\text{SP}}(\nu)L_{\text{LR}}$. Такое описание можно применить к усилению комбинационного рассеяния, усилению резонансного комбинационного рассеяния и усилению флуоресценции вблизи металлических наноструктур.

Функциональная форма K_{SP} совпадает с функциональной формой поляризуемости α металлической наноструктуры заданной геометрической формы. Если наночастица имеет сферическую форму и субволновой диаметр, то, группируя (5.7), получаем

$$L_{SP}(\omega) \propto \frac{\varepsilon(\omega) - 1}{\varepsilon(\omega) + 2}. \quad (9.5)$$

Аналогично для наночастиц эллиптической формы можно воспользоваться выражением для поляризуемости, которое приводилось в главе 5, тогда L_{SP} будет описывать полевое усиление, усредненное по поверхности частицы. В этом случае дополнительное усиление поля у вершин удлиненного эллипсоида, обусловленное непрерывностью диэлектрического поля смещения, будет описываться громоотводным коэффициентом L_{LR} , смасштабированным с учетом отношения диэлектрических проницаемостей металла и окружающего диэлектрика (обычно воздуха). Для частиц с более сложной геометрической формой коэффициенты усиления, как правило, рассчитываются численными методами.

9.2. SERS и усиление поля резонатора

Усиленное поверхностью комбинационное рассеяние может быть рассмотрено как процесс усиления, протекающий за счет взаимодействия между молекулой и электромагнитной модой резонатора. Резонатор может образоваться, к примеру, после соединения двух близко расположенных металлических наночастиц. Полагают, что именно в этом месте наблюдаются горячие зоны в экспериментах по одномолекулярной спектроскопии усиленного поверхностью комбинационного рассеяния [Kneipp et al., 1997; Nie and Emery, 1997]. Усиление электромагнитного поля в резонаторе можно выразить через качественный показатель Q , описывающий плотность энергии *спектральной* моды, и эффективный модовый объем V_{eff} , описывающий плотность энергии *пространственной* моды. В главе 2 мы видели, что поверхностные плазмон-поляритоны, распространяющиеся в зазоре между двумя тесно расположенными металлическими поверхностями, могут характеризоваться малой эффективной модовой длиной (меньшей дифракционного предела диэлектрической среды в зазоре). То же самое справедливо и для эффективного модового объема в плазмонных резонаторах, состоящих из таких структур, и для локализованных мод в металлических наночастицах.

Используя концепцию связи волновод–резонатор для анализа усиления падающего луча металлической наноструктурой [Maier, 2006b], про-

цесс спонтанного комбинационного рассеяния можно описать с помощью падающего луча возбуждения с интенсивностью $|\mathbf{E}_i(\omega_0)|^2/2\eta$ (η — сопротивление свободного пространства) и частотой ω_0 . Этот луч возбуждает раман-активную молекулу в резонаторе, в результате чего актом рассеяния испускаются стоксовы фотоны с частотой ω . В предыдущей главе отмечалось, что в силу малого сдвига стоксова излучения мы можем допустить равенство усиленной полей возбуждения и излучаемого стоксова поля. В предположении полевого усиления в резонаторе можно записать $Q(\omega_0) = Q(\omega) = Q$ и $V_{\text{eff}}(\omega_0) = V_{\text{eff}}(\omega) = V_{\text{eff}}$, это значит, что налетающий и излученный фотоны резонируют с полостью. Чтобы рассчитать усиление, необходимо выразить R через Q и V_{eff} (напомним, что R определяется по формуле (9.4)).

С учетом выражения $|s_+|^2 = |E_i|^2 A_i/2\eta$ для мощности, переданной падающим лучом с сечением A_i , можно найти изменение амплитуды u резонансной моды внутри резонатора по формуле $\dot{u}(t) = -\frac{\gamma}{2}u(t) + \kappa s_+$ [Haus, 1984], где u^2 обозначает полную усредненную по времени энергию в резонаторе. Величина $\gamma = \gamma_{\text{rad}} + \gamma_{\text{abs}}$ есть скорость падения энергии, вызванного излучением (γ_{rad}) и поглощением (γ_{abs}), а κ — коэффициент связи с падающим лучом, который зависит от размера и формы последнего. Коэффициент κ можно выразить как $\kappa = \sqrt{\gamma_i}$, где γ_i — вклад возбуждения в общее излучательное затухание [Хаус, 1984]. Для симметричного двустороннего резонатора эта величина в первом приближении равна $\gamma_i = (\gamma_{\text{rad}}/2)(A_c/A_i)$, где A_c — эффективное сечение излучения моды резонатора (поле излучения отображается в ближнем поле резонатора). Отметим, что в вышеприведенном соотношении мы положили $A_i > A_c$, а A_c не может быть меньше предельной площади дифракции A_d ($A_d \leq A_c \leq A_i$). Объединяя, приходим к заключению, что в стационарном состоянии амплитуда моды равна

$$u = \frac{\sqrt{2\gamma_{\text{rad}}A_c/A_i}|s_+|}{\gamma_{\text{rad}} + \gamma_{\text{abs}}} = \frac{\sqrt{\gamma_{\text{rad}}A_c}|\mathbf{E}_i|}{\sqrt{\eta}(\gamma_{\text{rad}} + \gamma_{\text{abs}})} \quad (9.6)$$

[Maier, 2006b]. При фиксированной входной мощности она максимальна, если $A_c = A_i$.

Поскольку излучение и поглощение по-разному влияют на затухание, следует отличать между собой диэлектрический и металлический резонаторы. Для диэлектрического резонатора ($\gamma_{\text{rad}} \gg \gamma_{\text{abs}}$) $u \propto 1/\sqrt{\gamma_{\text{rad}}} \propto \sqrt{Q}$, а для металлического резонатора ($\gamma_{\text{abs}} \gg \gamma_{\text{rad}}$) $u \propto 1/\gamma_{\text{abs}} \propto Q$. По этой причине в литературе используются разные правила масштабирования для полевого усиления в диэлектрическом [Spillane et al., 2002] и металлическом [Klar et al., 1998] резонаторах.

Эффективный модовый объем связывает локальное поле с полной энергией электрического поля в резонаторе (см. обсуждение эффективной модовой длины в главе 2), поэтому амплитуду резонансной моды можно записать как $= \sqrt{\varepsilon_0} |\mathbf{E}_{\text{loc}}| \sqrt{V_{\text{eff}}}$. Следовательно, с учетом (9.6) усиление входного излучения в металлическом резонаторе будет равно

$$\sqrt{R} = \frac{|\mathbf{E}_{\text{loc}}|^2}{|\mathbf{E}_i|^2} = \frac{\gamma_{\text{rad}} A_c}{4\pi^2 c^2 \eta \varepsilon_0 \lambda_0} \frac{Q^2}{V_{\text{eff}}}. \quad (9.7)$$

Аналогичный закон масштабирования был получен для локализации плазмонной энергии во фрактал подобных комплексах металлических наночастиц на металлических поверхностях [Shubin et al., 1999].

Далее воспользуемся этим выражением и найдем R для резонатора, образованного двумя серебряными наночастицами, разделенными наноразмерным зазором, — именно в таких конфигурациях наблюдаются горячие зоны SERS при $R \sim 10^{11}$ в условиях резонанса. Резонатор можно смоделировать как гетероструктуру металл/воздух/металл, которую мы рассматривали в главе 2. Боковые стороны этой гетероструктуры удовлетворяют резонансному условию Фабри–Перо: основной резонанс наступает тогда, когда половина длины волны связанной моды поверхностных плазмон-поляритонов находится внутри резонатора. Таким образом, эффективные размеры гетероструктуры соответствуют эффективной модовой длине L_z зазора, алгоритм расчета которой описывался в главе 2, и $L_y \sim L_x = \lambda_{\text{SPP}}/2 = \pi/\beta$. Вычисляя β и L_z с помощью упрощенного аналитического метода, применимого к описанию одномерной структуры серебро/воздух/серебро, в которой толщина слоя воздуха составляет 1 нм, учитывая равенство $A_c = A_d$ и используя значения (Q , γ_{rad}), найденные конечно-разностным моделированием во временной области, по формуле (9.7) получаем $R \sim 2,7 \times 10^{10}$ при длине волны возбуждения $\lambda_0 = 400$ нм. Этот результат согласуется с результатами трехмерного моделирования усиления для связанной частицы с аналогичной геометрией [Xu et al., 2000].

Общее видимое усиление стоксова излучения можно найти как произведение полевого усиления входного излучения и усиленного излучательного затухания при стоксовой частоте. Известно, что если ввести в металлический резонатор дипольный осциллятор, то *общая* скорость затухания $\gamma/\gamma_0 = (3/4\pi^2)(Q/\sqrt{V_{\text{eff}}})$ увеличится [Hinds, 1994].

Стоит отметить, что поглощение ведет к большим потерям энергии, чем излучение, и мы должны это учитывать. При расчете излучения света за пределами резонатора общему резонансному усилению необходимо приписать весовой коэффициент, в качестве которого выступает коэффициент

извлечения Q/Q_{rad} [Barnes, 1999; Vuckovic et al., 2000]. Усиление излучения при частоте *пикового* излучения для стоксовой линии можно записать как $(3/4\pi^2)(Q^2/\bar{V}_{\text{eff}})(Q/Q_{\text{rad}})$. Если учесть соотношение для усиления поля возбуждения (9.7), то общее усиление для рассматриваемого резонатора мы получим равным $1,5 \times 10^{12}$. Это значение совпадает с экспериментальными данными [Nie and Emery, 1997; Kneipp et al., 1997]. Более подробно об этой модели читайте в [Maier, 2006b].

9.3. Геометрии SERS

В этом разделе мы рассмотрим несколько важных геометрий, в которых экспериментально наблюдается существенное усиление комбинационного рассеяния. В связи с тем, что для достижения локального усиления поля желательно использовать поверхность, поддерживающую сильно локализованные плазмоны, предпочтение отдается комплексам металлических наноструктур с внутренними зазорами в несколько нанометров. Более того, собственный отклик металла, выраженный через диэлектрическую функцию $\epsilon(\omega)$, позволяет сделать так, чтобы резонансы наступали в интересующем нас спектральном режиме. Поскольку до сих пор в рамках большинства исследований использовалось золото и серебро, усиленное поверхностью комбинационное рассеяние с высокими показателями усиления отмечалось главным образом в видимой области спектра.

Ранее мы неоднократно отмечали, что усиления самой высокой степени достигались до сих пор на шероховатых серебряных поверхностях и составляли порядка 10^{14} [Kneipp et al., 1997; Nie and Emery, 1997]. Полагают, что 10^{12} из общего усиления обеспечивает электромагнитный эффект. Если масштабировать комбинационное усиление по амплитуде локального поля (9.4), то можно заключить, что шероховатая поверхность должна поддерживать горячие зоны с показателями $L(\nu)$ полевого усиления порядка 1000.

Гарсиа-Видаль и Пендри смоделировали описанную геометрию как совокупность близко расположенных полуцилиндров на плоской поверхности (рис. 9.1, слева) [Garcia-Vidal and Pendry, 1996]. Исследователи рассчитали усиление комбинационного рассеяния, обусловленное такой топографией, применив анализ рассеяния, и в результате получили $R \approx 10^8$ для зазоров между соседними цилиндрами (рис. 9.2, справа). На рис. 9.3 показано сильно локализованное поле в таком зазоре; ясно, что оно обусловлено локализованной плазмонной модой в промежутке между двумя металлическими поверхностями. Электроны проводимости в двух соприкасающихся цилиндрах движутся так, как будто стремятся создать распределение плотности противоположного заряда на соседних поверхностях. Следовательно, эта

мода схожа с модой связанных поверхностных плазмон-поляритонов в гетероструктуре металл/воздух/металл (см. главу 2 и предыдущий раздел). В рамках исчерпывающих численных электромагнитных исследований зазоров между металлическими наночастицами было доказано, что локализованные в зазорах моды играют важную роль в усилении комбинационного рассеяния. Эти же исследования подтвердили возможность такого усиления, при котором допускается обнаружение одиночных молекул [Xu et al., 2000]. Кроме того, эти исследования доказали существование усиленных оптических сил, поляризующих молекулы и притягивающих их к зазорам из-за сильного полевого градиента [Xu et al., 2002].

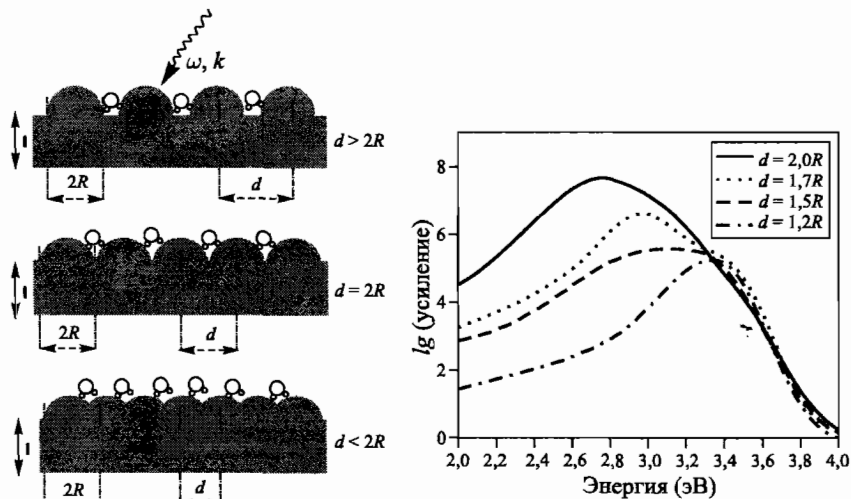


Рис. 9.2. Схематичное изображение шероховатой металлической поверхности, представляющей собой пластину серебра, покрытую цепочкой серебряных полуцилиндров (слева), и локальное усиление, рассчитываемое в зазорах между полуцилиндрами (справа) для различных значений ширины зазора [Garcia-Vidal and Pendry, 1996]. © American Physical Society, 1996. Используется с разрешения правообладателя

Осознание того факта, что локализованные плазмоны играют критическую роль в усилении комбинационного рассеяния молекул на металлической поверхности, сподвигло исследователей на проектирование и производство SERS-подложек с регулируемой поверхностной структурой, оптимизированной под усиление поля. Была проанализирована эффективность топографий, основанных на тесно расположенных наночастицах (с помо-

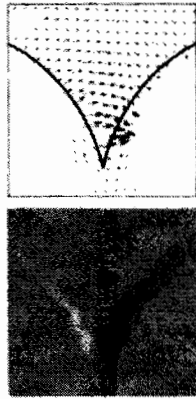


Рис. 9.3. Распределение электрического поля (верхний рисунок) и его дивергенция (нижний рисунок) на стыке двух полуцилиндров, моделирующих шероховатость поверхности на рис. 9.2 [Garcia-Vidal and Pendry, 1996]. © American Physical Society, 1996. Используется с разрешения правообладателя

щью которых создается контролируемая регулярная шероховатость поверхности), наноструктурах особой формы или нанопустотах, для их использования в качестве SERS-подложек.

К примеру, исследователи описали усиленное поверхностью комбинационное рассеяние, основанное на изолированных металлических наночастицах, применив дальнепольную спектроскопию комбинационного рассеяния к регулярному массиву частиц, расположенных на металлической пленочной подложке. В этом случае резонанс локализованных поверхностных плазмонов обусловлен дальнепольными связями между частицами [Felidj et al., 2004; Laurent et al., 2005a], как описано в главе 5. Исследования наночастиц различной формы подтвердили важнейшую роль локализованных поверхностных плазмонов в рамановском усилении [Grand et al., 2005]. Кроме того, было доказано, что на усиленное поверхностью комбинационное рассеяние влияют и мультиполярные возбуждения в частицах вытянутой формы [Laurent et al., 2005b]. Другой обнадеживающей геометрией являются металлические нанооболочки [Xu, 2004; Talley et al., 2005]. Они могут обеспечить значительное усиление поля благодаря тому, что на частотах ближней инфракрасной области ширина плазмонных спектральных линий уменьшается. Усиление поля вследствие резонансов локализованных поверхностных плазмонов можно еще более усугубить, если поместить частицы в микрополость [Kim et al., 2005], или если связать локализованный

плазмон с распространяющимися поверхностными плазмон-поляритонами на непрерывной металлической пленке [Daniels and Chumanov, 2005].

На рис. 9.4 изображен пример толстой металлической пленки, структурированной решеткой нанопустот [Baumberg et al., 2005]. В этом случае резонансы локализованных плазмонов поддерживаются пустотами, которые впоследствии выполняют роль решетки для фазовой синхронизации и возбуждения поверхностных плазмон-поляритонов (рис. 9.4б). Плазмон рассеивается молекулой в плазмон более низкой частоты, который далее рассеивается в фотон. Тем не менее электромагнитное поле усиление на толстых пленках, структурированных нанопустотами, не так значительно, как усиление на шероховатых поверхностях, на которых наблюдается одномолекулярное комбинационное рассеяние.

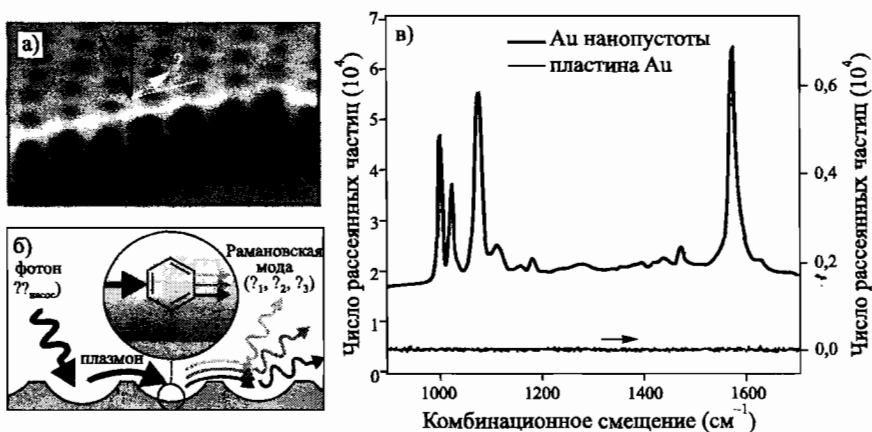


Рис. 9.4. Усиленное поверхностью комбинационное рассеяние (SERS) при использовании металлической пленки с нанопустотами. (а) Полученное с помощью сканирующего электронного микроскопа изображение структурированной плоскости. (б) Схема SERS-процесса. (в) Пример SERS-спектра [Baumberg et al., 2005]. © American Chemical Society, 2005. Используется с разрешения правообладателя

Для достижения электромагнитного полевого усиления порядка 1000, необходимого для одномолекулярного комбинационного рассеяния с наноструктурами, зазоры между металлическими поверхностями должны быть наноразмерными, подобными тем, что характерны для естественных шероховатых поверхностей. Этого можно достичь, если, к примеру, изготовить металлические наночастицы в форме полумесяца с двумя острыми верши-

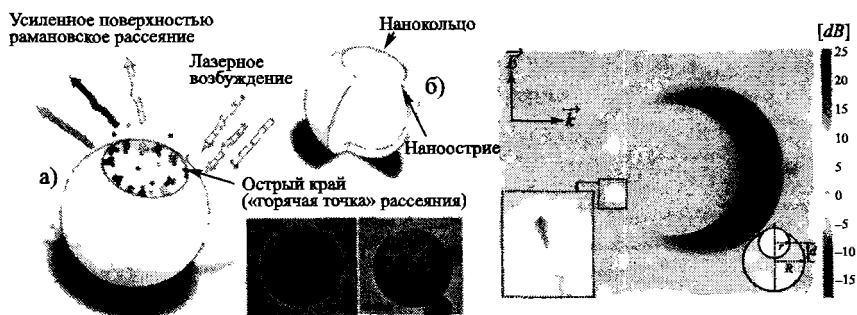


Рис. 9.5. Образование структур, имеющих форму полумесяца (слева), и профиль электрического поля (справа), на котором видны участки усиления поля на концах полумесяца [Lu et al., 2005]. © American Chemical Society, 2005. Используется с разрешения правообладателя

нами, разделенными малым зазором [Lu et al., 2005]. Лу и его коллеги сформировали такие частицы путем угловой металлизации наносфер (рис. 9.5, слева). Результаты электромагнитного моделирования выявляют значительное полевое усиление вблизи острого конца полумесяца (рис. 9.5, справа). Полагают, что это усиление обусловлено резонансами локализованных плазмонов и эффектом громоотвода. Коэффициент усиления поля вблизи концов превышает 100, в результате чего стоксово усиление оказывается порядка 10^{10} . Аналогичное усиление может быть достигнуто в малых промежутках между противостоящими нанотреугольниками [Sundaramurthy et al., 2005].

Другой подходящей геометрией для реализации SERS являются выровненные по одной прямой нанопровода большого удлинения в пористой матрице. На рис. 9.6 показан пример SERS-спектра и полученное с помощью сканирующего электронного микроскопа изображение решетки серебряных нанопроводов, образованной с помощью пористой алюминооксидной матрицы [Sauer et al., 2005]. Другие исследователи применили в качестве подложки для образования дендритных металлических структур пористый кремний [Lin et al., 2004].

В рамках большинства исследований усиленного поверхностно комбинационного рассеяния с использованием наноструктурных топографий внимание фокусируется на применении золота и серебра, которые дают резонанс локализованных плазмонов в видимой или ближней инфракрасной области спектра (для частиц вытянутой формы). По этой же причине золото и серебро подходят для наблюдения за комбинационным рассеянием в этой

же области. Чтобы передвинуть усиленное поверхностью комбинационное рассеяние в другие частотные диапазоны, в частности, в ультрафиолетовый, исследователи начали применять другие металлы, например никель [Sauer et al., 2006]. Кроме него, подходящими для применения в ультрафиолетовой области спектра могут оказаться родий и рутений [Ren et al., 2003; Tian and Ren, 2004], которые, однако, не дадут высоких показателей усиления.

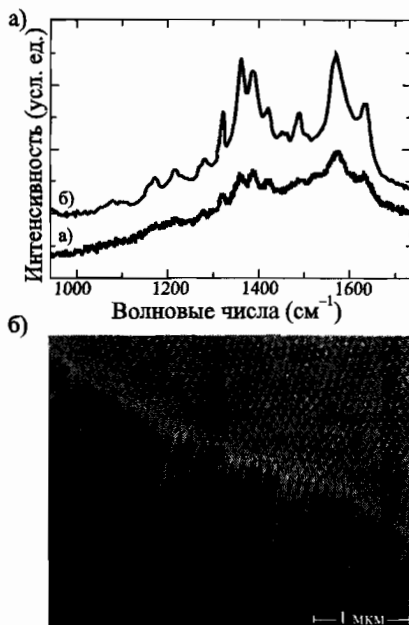


Рис. 9.6. Спектры усиленного поверхностью комбинационного рассеяния (а) и полученное с помощью сканирующего электронного микроскопа изображение (б) решетки золотых нанопроводов в пористой алюмооксидной матрице [Sauer et al., 2005]. © American Institute of Physics, 2005. Используется с разрешения правообладателя

Металлические поверхности с топографией, подходящей для SERS, могут использоваться как платформы для биологического и химического зондирования. Многие практические решения (особенно в материаловедении) используют комбинационное рассеяние для анализа не одиночных молекул, а тонкопленочных образцов полупроводников и адсорбированных частиц. Для этих случаев нужны пространственно разрешенные спектры комбинационного рассеяния, которые, как правило, получают сканирова-

нием пучка возбуждения вдоль пленки оптическим микроскопом. Чтобы при этом наблюдалось усиление рамановского сигнала, должно протекать усиленное на остриях комбинационное рассеяние [Lu et al., 2005]. Металлическое острие сканируется вдоль поверхности по методу обратной связи наподобие камертонной или той, что используется в сканирующей туннельной микроскопии или атомно-силовой микроскопии. Острие освещается извне сфокусированным лазерным лучом, в результате чего вокруг его кончика создается усиленное поле, обусловленное локализованными резонансами и громоотводным эффектом. Для наблюдения за сильным полевым усилением у вершины острия необходимо выбрать такое условие освещения, при котором создается продольное биполярное распределение заряда. Если освещать с нижней точки, то нужны сильно сфокусированные гауссовы лучи [Nayazawa et al., 2004] или лучи Эрмита–Гаусса, обеспечивающие сильную продольную составляющую поля. Заметим, что на металлизированных остриях конической формы усиление поля может быть обусловлено как локализованными модами у сферической вершины острия, так и поверхностными модами, поддерживаемыми поверхностью конуса. На рис. 9.7 в качестве примера показано усиление электрического поля вблизи металлического острия, вычисленное конечно-разностным моделированием во временной области для освещения под углом с частотой $\omega_p/\sqrt{3}$ локализованной в вершине моды (верхний ряд) и для нормального освещения с частотой $\omega_p/\sqrt{2}$ поверхностной плазмонной моды на поверхности конуса (нижний ряд) [Milner and Richards, 2001].

На сегодняшний день полагают, что, помимо собственного усиления в вершине металлического острия, которое мы рассматривали в главе 7 в контексте фокусирования поверхностных плазмон-поляритонов, в наблюдаемое усиление вносит свой вклад усиленное поле в промежутке между острием и образцом. Подобного рода технологии помогли, к примеру, исследовать нуклеотиды [Watanabe et al., 2004] и маленькие молекулы на основе углерода [Pettinger et al., 2004]. В опытах с углеродными нанотрубными подложками было достигнуто разрешение порядка 25 нм [Hartschuh et al., 2003].

9.4. Усиление флуоресценции

Излучение флуоресцирующих частиц, помещенных в ближнее поле, также усиливается скрытыми электромагнитными полями вблизи металлических поверхностей, которые обусловлены резонансами локализованных плазмонов и распространением поверхностных плазмон-поляритонов. Для молекул, соприкасающихся с металлической поверхностью, следует, одна-

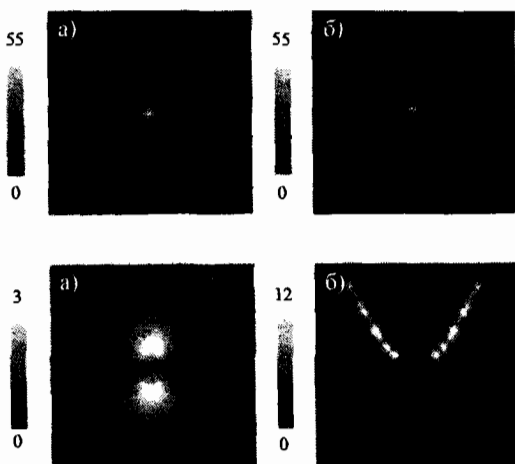


Рис. 9.7. Расчеты усиления электрического поля методом конечных разностей во временной области для серебряного конуса со сферической вершиной радиуса 20 нм и полууглом 30° . В верхнем ряду показано распределение поля при резонансной частоте локализованной у вершины моды, когда острие находится на 2 нм выше стеклянной подложки. В нижнем ряду показано распределение поля в случае освещения острия при резонансной частоте плазмонной моды на поверхности серебряного конуса. (а) Вид спереди со стороны стеклянной подложки. (б) Боковой срез, проходящий через плоскость симметрии конуса [Milner and Richards, 2001]. © Blackwell Publishing, 2001. Используется с разрешения правообладателя

ко, учитывать гашение флуоресценции вследствие безызлучательных переходов. Для наблюдения за усиленной флуоресценцией необходимо, чтобы разделительный слой диэлектрика был порядка нескольких нанометров, тогда между молекулой и металлом будет происходить безызлучательный перенос возбуждения. В главе 4 мы уже говорили об этом, когда рассматривали флуоресцентные изображения распространяющихся поверхностных плазмон-поляритонов.

А теперь несколько слов о сложности процесса взаимодействия на примере одного конкретного исследования. Ангер и его коллеги провели тщательное исследование усиления и подавления излучения от одиночной флуоресцентной молекулы вблизи субволновой золотой сферы [Anger et al., 2006]. Флуоресценция обусловлена возбуждением молекулы падающим полем (это возбуждение может привести к существенному усилению за счет плазмонного резонанса золотой частицы) и последующим излучением мо-

лекулой, которое определяется разностью между излучательным и безызлучательным процессами затухания. Поскольку безызлучательный перенос энергии к наночастице возможен лишь на малых расстояниях между молекулой и сферой, следует ожидать снижение вероятности испускания, несмотря на увеличение скорости возбуждения из-за усиления локального поля.

При слабом возбуждении скорость флуоресцентного излучения γ_{em} можно связать со скоростью возбуждения γ_{exc} и общей скоростью затухания $\gamma = \gamma_r + \gamma_{nr}$:

$$\gamma_{em} = \gamma_{exc} \frac{\gamma_r}{\gamma}, \quad (9.8)$$

где γ_r — скорость излучательного затухания, а γ_{nr} — скорость безызлучательного затухания. Вероятность испускания $q_a = \gamma_r/\gamma$ также называют квантовым выходом излучения. Таким образом, процесс флуоресценции можно описать, применив двухуровневую модель молекулярного перехода и модель электромагнитного окружения, модифицированного присутствием золотой наночастицы, построенную с помощью функции Грина. В рамках этого исследования для малых расстояний z между излучателем и сферой было доказано, что рассмотрение частицы как простого диполя сильно отличается от ее описания с учетом мультиполей высших порядков. На рис. 9.8 показаны результаты для квантового выхода q_a , нормированной скорости возбуждения γ_{exc} и нормированной скорости флуоресцентного излучения γ_{em} как функций расстояния между молекулой и золотыми сферами различных субволновых размеров. Принимая во внимание взаимодействия высших порядков (помимо простой дипольной связи), исследователи подтвердили полученные экспериментальным путем данные, касающиеся гашения излучения при малых зазорах между излучателем и металлической структурой. Излучение гасится вследствие безызлучательного переноса энергии (рис. 9.8б). Отметим, что поскольку γ_{nr} пропорционально джоулевой теплоте, максимальное флуоресцентное усиление не обязательно достигается возбуждением при частоте плазмонного резонанса.

На рис. 9.9а изображена экспериментальная установка для наблюдения за прогнозируемой зависимостью флуоресцентного излучения от расстояния. Золотая сфера прикреплена к сканирующему зонду ближнепольного оптического микроскопа, что позволяет регулировать расстояние между сферой и молекулой, расположенной на плоской подложке. На рис. 9.9б показано расчетное распределение поля в зазоре между сферой и поверхностью.

Анализ скорости одномолекулярного излучения в зависимости от вертикального положения зонда выявляет функциональную зависимость, со-

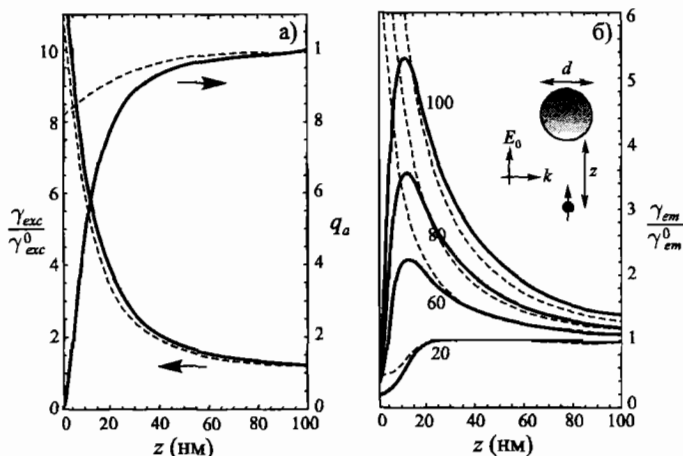


Рис. 9.8. Расчетные значения квантового выхода q_a , скорости возбуждения γ_{exc} и скорости флуоресценции γ_{em} для одиночной молекулы, расположенной на расстоянии z от золотой сферы диаметром 80 нм (а) или так, как показано на рисунке (б). Возбуждение происходит при $\lambda = 650$ нм, что с учетом принятого допущения совпадает с пиком спектра излучения. Все скорости нормированы к соответствующим значениям в свободном пространстве. Пунктирная линия относится к дипольной модели частицы, а сплошные линии — к модели, учитывающей мультиполи высших порядков [Anger et al., 2006]. © American Physical Society, 2006. Используется с разрешения правообладателя

гласующуюся с теоретическими прогнозами (рис. 9.10а). Результаты экспериментального наблюдения и теоретических расчетов изображены на панелях (б) и (в); видно, что они достаточно хорошо соответствуют друг другу. Важно отметить, что снижение квантового выхода ведет не только к росту скорости безызлучательного затухания, но также к индуцированному фазой снижению излучательного затухания для малых зазоров между излучателем и частицей [Dulkeith et al., 2002]. Ближнеполюсная оптическая микроскопия — удобный инструмент для подконтрольного исследования усиления и подавления флуоресцентного излучения. Кроме того, она выявляет новые геометрии, подходящие для подобного рода исследований, это, например, металлические туннельные переходы, заполненные органическим слоем с вкраплениями молекул [Liu et al., 2006].

Ксу и его коллеги доказали, что усиление комбинационного рассеяния и флуоресценции вблизи металлической поверхности или наночастицы можно описать одним и тем же способом [Xu et al., 2004; Johannsson et

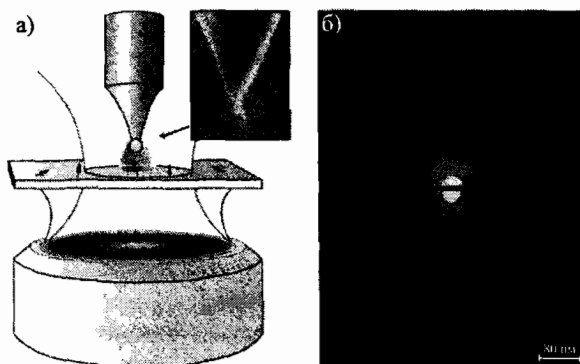


Рис. 9.9. Экспериментальная установка (а) и рассчитанное распределение поля для излучателя, находящегося на стеклянной подложке на расстоянии $z = 60$ нм ниже частицы золота (б), найденное в рамках исследования одномолекулярной флуоресценции вблизи золотой сферы [Anger et al., 2006]. © American Physical Society, 2006. Используется с разрешения правообладателя

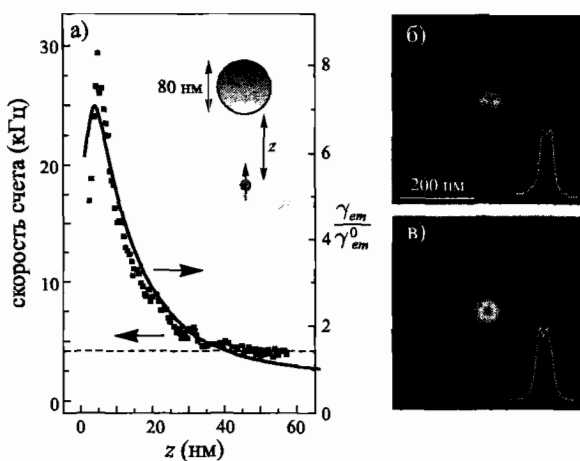


Рис. 9.10. Экспериментальные значения скорости испускания (обозначенные точками) в сравнении с теоретической кривой, изображенной на рис. 9.8b (а), а также ближнепольное изображение (б) флуоресцентной молекулы вблизи золотой сферы. Результаты теоретического расчета показаны на рисунке (с) [Anger et al., 2006]. © American Physical Society, 2006. Используется с разрешения правообладателя

al., 2005]. Более мы не будем рассматривать флуоресценцию и посвятим остаток главы краткому обзору других излучательных процессов.

9.5. Люминесценция металлических наноструктур

Первым фотолюминесценцию от образцов благородных металлов наблюдал Мурадиа. Он использовал образцы золота и меди, которые возбуждал сильным (мощностью 2 Вт) непрерывным лучом лазера на ионах аргона [Moogadia, 1969]. Люминесценция обусловлена возбуждением d -электронов в зоне sp -проводимости и последующей излучательной рекомбинацией. В результате пик спектра люминесценции центрируется относительно межзонной границы поглощения. В силу того что безызлучательное затухание доминирует над излучательным, квантовая эффективность этого процесса очень мала — порядка 10^{-10} для гладких металлических пленок.

Существенное усиление фотолюминесцентного выхода (до 10^6) было достигнуто в опытах с шероховатыми металлическими пленками [Boyd, 2003] и металлическими наночастицами [Link and El-Sayed, 2000; Wilcoxon and Martin, 1998; Dulkeith et al., 2004]. Аналогичное усиление характерно для комбинационного рассеяния. Усиление можно объяснить с помощью модели усиленных локализованных полей, обусловленных плазмонным возбуждением и громоотводным эффектом. Коэффициент усиления $L(\nu)$ следует определить так, как мы это делали в начале главы. Следуя правилу масштабирования для комбинационного усиления (9.3), масштабируем усиление фотолюминесценции в модели локального поля по формуле

$$P_{\text{lum}} \propto L(\omega_{\text{exc}})^2 L(\omega_{\text{em}})^2, \quad (9.9)$$

где ω_{exc} и ω_{em} — частоты возбуждения и излучения соответственно. Такая модель может естественным образом объяснить, почему в экспериментах наблюдается значительное усиление широкой полосы люминесценции лишь в случае спектрального положения плазмонного резонанса с более резким спектром излучения. Это явление наблюдали Линк и его коллеги, исследуя золотые наностержни с разным соотношением сторон [Link and El-Sayed, 2000].

На снимке локального поля процесс фотолюминесценции не сильно отличается от соответствующего процесса для плоских поверхностей в том смысле, что излучение света обусловлено рекомбинацией между sp -и d -зонами, хоть и в скрытых локальных полях. Не так давно Дулкейт и его коллеги разработали другую модель для описания усиления на базе исследований фотолюминесценции золотых наносфер [Dulkeith et al.,

2004]. Как и в ранних исследованиях, они наблюдали спектр люминесценции, схожий со спектром для локализованной плазмонной моды наносфер (рис. 9.11а). Модель локального поля, однако, не может объяснить эффективность порядка 10^{-6} . Была предложена другая модель, в рамках которой значительная порция возбужденных *sp*-электронов распадается в плазмоны (рис. 9.11б). Преобладание плазмонного затухания объясняется высокой поляризуемостью плазмона частицы, в силу чего излучательное затухание оказывается гораздо более сильным, чем излучательное затухание при межзонной рекомбинации. Излучательный распад плазмона в фотоны и дает наблюдаемое усиление фотolumинесценции.

Рассмотренные выше процессы люминесценции являются по своей природе линейными или однофотонными. Существенное усиление также достигается за счет мультифотонного поглощения [Farrer et al., 2005], которое мы не будем рассматривать.

9.6. Усиление нелинейных процессов

В завершение главы хотелось бы поговорить о другой категории излучательных процессов, усиление которых протекает за счет локализации поля плазмонов. Речь идет о нелинейной генерации света. После всего вышесказанного вас не должно, конечно же, удивлять, что локализованные поверхностные плазмоны существенно усиливают и нелинейные процессы, такие как генерация второй и третьей гармоник.

В принципе, существуют две различные конфигурации модели, каждая из которых по-своему объясняет нелинейные эффекты: или собственной нелинейной восприимчивостью металлической наноструктуры, или нелинейным окружением. Оба нелинейных процесса усиливаются на частотах в пределах локализации плазмона. Остановимся на кратком описании первого процесса в случае генерации второй гармоник металлическими наноструктурами.

Факт излучения второй гармоник металлической поверхностью в отражении, несмотря на кубическую симметрию металлической решетки, объясняется нарушением симметрии поверхности [Bloembergen et al., 1968; Rudnick and Stern, 1971; Sipe et al., 1980]. Этот процесс может быть усилен за счет связей с поверхностными плазмонами на толстых пленках [Simon et al., 1974] или на пленках с решеточным структурированием поверхности [Coutaz et al., 1985]. В последнем случае коэффициент усиления достигает 36, что сравнимо с усилением для толстой пленки. Значительное усиление излучения второй гармоник также может быть получено на шероховатых

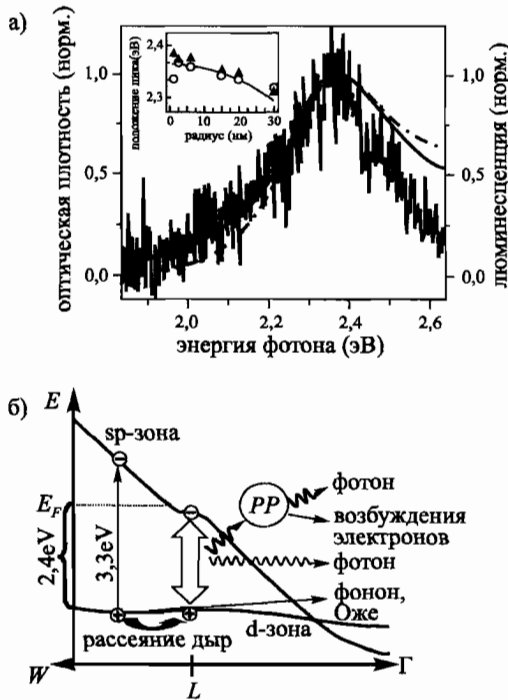


Рис. 9.11. (а) Оптическая плотность (черная линия) и спектр фотолюминесценции (серая линия) для наночастиц золота радиусом 6 нм. Штрихпунктирной линией изображен спектр экстинкции, вычисленный с помощью теории Ми. На рисунке-вкладке показано пиковое положение оптической плотности (треугольники) и спектры фотолюминесценции (кружочки) для наночастиц золота с разными радиусами. (б) Схема процесса фотолюминесценции, осуществляемой посредством плазмонов. После начального возбуждения дыры в d-зоне могут либо излучательно рекомбинировать с электронами в sd-зоне, либо безызлучательно рекомбинировать с образованием плазмона частицы, который затухает излучательно или безызлучательно [Dulkeith et al., 2004]. © American Physical Society, 2004. Используется с разрешения правообладателя

металлических поверхностях [Chen et al., 1983], оно хорошо объясняется моделью локального поля. В этом случае относительная мощность P_{SH} излучения второй гармоники определяется по правилу

$$P_{SH} \propto |L(2\omega)|^2 |L^2(\omega)|^2. \quad (9.10)$$

Чтобы рассчитать усиление общего нелинейного процесса n -го порядка, необходимо заменить все поля $E(\omega)$ в выражении для расчета нелинейной поляризуемости на локальное поле $E_{\text{loc}}(\omega) = L(\omega)E(\omega)$ и дополнительно ввести коэффициент усиления для излучения, испускаемого с частотой $n\omega$.

Шероховатые металлические пленки можно рассматривать как пример более общего случая композитных оптических материалов с природной нерегулярностью. Для описания нелинейных оптических свойств таких композитных материалов, состоящих из частиц, используется модель Максвелла–Гарнетта [Shalaev et al., 1996; Sipe et al., 1980]. В настоящей книге данная модель не рассматривается, более подробная информация содержится в работе [Shalaev, 2000].

Широкий круг исследований усиленной генерации второй гармоники от шероховатых металлических пленок с применением лазерной сканирующей оптической микроскопии подтвердил, что усиление действительно обуславливается горячими зонами с сильными полями и связано с локализованными модами [Bozhevolnyi et al., 2003]. В рамках исследований нелинейных свойств металлических наночастиц была получена важная информация, касающаяся времени жизни плазмонов [Heilweil and Hochstrasser, 1985; Lampert et al., 1999] и восприимчивости [Antoine et al., 1997; Ganeev et al., 2004; Lippitz et al., 2005].

ГЛАВА 10

Спектроскопия и сенсорные измерения

В данной главе будут рассмотрены технологии спектроскопических исследований резонансов локализованных плазмонов в одиночных металлических наночастицах, а также практические реализации этих технологий для сенсорных измерений. Принцип работы сенсорных устройств основан на зависимости спектральных резонансов одиночных наночастиц от их диэлектрического окружения в пределах ближнего поля. При исследовании биологических объектов поглощение молекул на металлической поверхности ведет к спектральным изменениям, связанным с плазмонными модами. Из-за сильной локализации и высокой концентрации энергии в ближнем поле поверхностных плазмонов даже молекулярные монослои могут привести к сильным спектральным изменениям. Подобная чувствительность сенсоров с использованием поверхностных плазмонов уже два десятилетия используется в качестве аналитической сенсорной технологии.

Важнейшее свойство, реализованное практически во всех биосенсорных устройствах, это обеспечение избирательности. В датчиках на основе поверхностных плазмонов избирательность достигается благодаря металлической поверхности. Такой подход позволяет добиться селективного связывания с реагентом, который и подвергается сенсорному измерению. Мы не будем останавливаться на данном аспекте сенсорного проектирования, отметим лишь, что химические связи на поверхности золота заслуживают в этом смысле особого внимания, поскольку связи между атомами золота и органическими молекулами образуются достаточно прочно. Поэтому почти во всех практических оптико-сенсорных реализациях, основанных на поверхностных плазмонах, в качестве металла выбирают золото. Как следствие, в силу особенностей диэлектрической проницаемости золота, работа сенсорных датчиков ограничивается видимой и ближней инфракрасной областью спектра.

В данной главе мы рассмотрим различные геометрии возбуждения, которые подходят для исследования локализованных поверхностных плазмонов, подобно тому, как это делалось в главе 3 при рассмотрении возбуждения поверхностных плазмон-поляритонов. Во второй части главы мы по-

стараясь описать разные аспекты сенсорных датчиков, основанных на распространении поверхностных плазмон-поляритонов. Мы будем исходить из того, как изменяется дисперсионное соотношение и условия фазовой синхронизации на границах плоских металлических поверхностей при изменении показателей преломления. При этом мы ограничимся рассмотрением двух геометрий возбуждения: использующих призмный ввод излучения и основанных на оптических волокнах, покрытых металлической пленкой. В данной главе не будет обсуждаться эффективность сенсоров с точки зрения избирательности и чувствительности. Об аспектах исследования сенсоров читайте обзорную работу [Nomola et al., 1999].

10.1. Одночастичная спектроскопия

В данном разделе мы продолжим обсуждать механизмы возбуждения, которые начали рассматривать в главе 3, в плане распространения плазмон-поляритонов. Мы рассмотрим способы возбуждения резонансов локализованных плазмонов в металлических наночастицах. Изучая в главе 5 основные локализованные резонансы, мы видели, что частоты резонансных мод регулярных ансамблей частиц можно описать с помощью традиционной спектроскопии экстинкции. В условиях резонанса поперечные сечения экстинкции отдельных частиц увеличиваются, и при достаточно больших расстояниях между частицами пик экстинкции ансамбля совпадает с частотой локализованных плазмонов отдельной частицы. В реальном эксперименте частицы могут отличаться по форме, в результате кривая экстинкции может неоднородно уширяться. Для спектроскопии одиночных наночастиц требуются более чувствительные датчики обнаружения (вследствие большого фонового излучения, которое идет напрямую от источника к детектору); позже в этом разделе мы обсудим эту ситуацию.

Исследование плазмонных резонансов одиночных частиц интересно не только с точки зрения теории (например определение однородной ширины линии Γ), но и с точки зрения потенциального применения в области сенсорных измерений. Так, сенсоры, основанные на одиночных металлических наночастицах, реагируют на частотные сдвиги дипольного плазмонного резонанса в условиях связывания молекул с поверхностью наночастицы. Это химическое связывание детектируется средствами спектроскопии для исследования одиночных частиц.

Перейдем к краткому рассмотрению вопроса. Для сферической частицы субволнового диаметра $d \ll \lambda_0$ резонансная частота дипольной моды при малом затухании может быть оценена по формуле Фрелиха

$$\varepsilon(\omega_{\text{sp}}) = -2\varepsilon_m, \quad (10.1)$$

где $\varepsilon(\omega)$ — диэлектрическая функция металла, а ε_m — диэлектрическая постоянная изолирующего вещества. При выводе уравнения (10.1) в главе 5 мы предполагали, что окружающая среда бесконечна. Субволновая локализация дипольной плазмонной моды приводит к тому, что ω_{sp} зависит только от диэлектрического окружения в пределах рассеянного ближнего поля частицы. Изменения постоянной ε_m , обусловленные, скажем, поглощением молекулярного монослоя на поверхности частицы, можно обнаружить по изменениям дипольной резонансной частоты ω_{sp} .

В такой схеме сенсорные измерения легко провести с использованием спектроскопии экстинкции дальнего поля при условии, что частицы будут упорядочены в регулярный массив, который будет представлять собой сенсорный шаблон. Несмотря на это, предпочтительнее использовать сенсоры на базе *одиночной* металлической наночастицы. Во-первых, возбуждение одиночной частицы не нарушается из-за неоднородного расширения резонансной линии, наблюдаемого в дальнеполевой спектроскопии. Это свойство и тот факт, что установление связей контролируется локально, увеличивают чувствительность сенсора, о чем свидетельствует смещение пика с изменением числа образуемых связей. Кроме того, сенсоры, основанные на одиночных частицах диаметром меньше микрона, должны обеспечивать высокую интеграционную плотность сенсорных узлов при анализе большого количества образцов. Чтобы этого добиться, необходимо разработать подходящую схему, работающую по принципу распараллеливания для индивидуальных частиц из ансамбля.

По этой причине исследования одночастичных сенсоров опираются на спектроскопическое исследование плазмонного резонанса отдельных субволновых металлических наночастиц. Далее мы рассмотрим четыре важные технологии для оптического возбуждения, которые подходят для реализации поставленной задачи: спектроскопию полного внутреннего отражения, ближнеполевую микроскопию, темнопольную микроскопию и фототермическое получение изображений малых частиц, размеры которых не превышают 10 нм.

В *спектроскопии полного внутреннего отражения* металлические наноструктуры располагаются поверх призмы, а возбуждение осуществляется за счет освещения в условиях полного внутреннего отражения. Подобно возбуждению поверхностных плазмон-поляритонов на толстой металлической пленке, рассмотренному в главе 3, рассеянное над призмой поле играет роль локального источника возбуждения для граничных мод, что ведет к усиленному резонансом рассеянию. Чтобы определить частоту пространственно ограниченных мод в металлических наночастицах, призму освещают белым светом и детектируют рассеянный над призмой свет путем улавливания в дальнем поле (рис. 10.1).

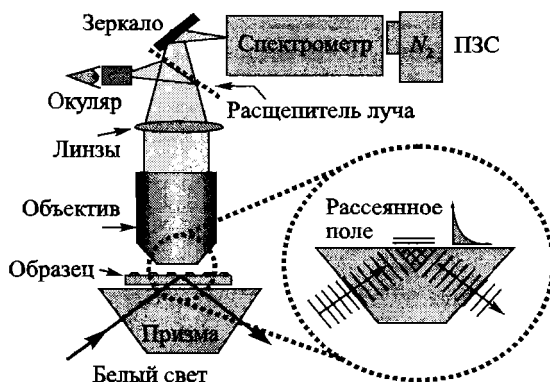


Рис. 10.1. Установка для одночастичной спектроскопии, в которой используется затухающее возбуждение за счет полного внутреннего отражения в призме и наблюдение за рассеянным светом [Sonnichsen et al., 2000]. © American Institute of Physics, 2000. Используется с разрешения правообладателя

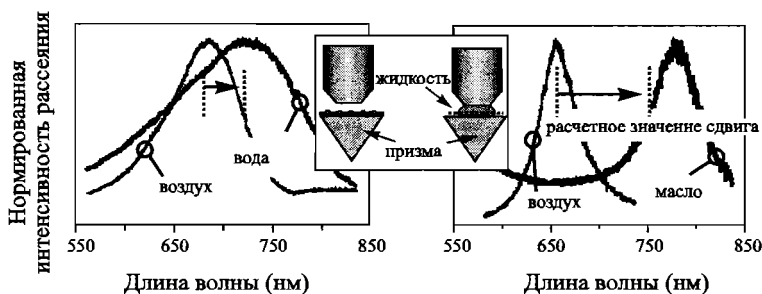


Рис. 10.2. Смещение плазмонного резонанса для частицы, обнаруживаемое путем призмного возбуждения [Sonnichsen et al., 2000]. © American Institute of Physics, 2000. Используется с разрешения правообладателя

На рис. 10.2 показаны примеры плазмонных спектров для одиночной золотой частицы, спектры получены рассмотренным выше способом. Из (10.1) следует ожидать, что резонансный пик дипольной плазмонной моды сместится в красную область спектра при погружении частицы в среду с высоким показателем преломления, такую как вода или масло. Ожидаемое спектральное изменение накопленной интенсивности в первом приближении рассчитывается по формулам для поперечных сечений из теории Ми первого порядка (5.13); при этом следует использовать подходящее для металла значение диэлектрической постоянной $\epsilon(\omega)$. В случае, когда частица

металла, расположенная на стеклянной призме, помещается во внешнюю среду, эффективную диэлектрическую постоянную среды можно взять приближенно равной $1/2(\epsilon_{\text{prism}} + \epsilon_m)$.

Одночастичную спектроскопию можно провести с использованием ближнепольной оптической микроскопии, т. е. помещая в ближнее поле исследуемой частицы апертурный волоконный зонд. Простейшую спектроскопическую информацию мы получаем, когда наблюдаем за спектральным распределением интенсивности, собираемой в дальнем поле (либо в пропускании, либо в отражении), после локального освещения частицы белым светом. Отсюда можно найти резонансные частоты и однородные спектральные линии плазмонных мод в уединенных частицах. Первые спектроскопические исследования одиночных частиц проводились с применением ближнепольной оптической микроскопии пропускания, в рамках которой использовалось освещение в ближнем поле и улавливание в дальнем поле [Klar et al., 1998], также использовалась ближнепольная оптическая микроскопия в режиме улавливания, в рамках которой был применен призмный ввод излучения и улавливание в ближнем поле [Markel et al., 1999].

Сравнительно недавно Михайловский с коллегами экспериментально показали, что ближнепольная оптическая микроскопия в режиме пропускания с локальным освещением белым светом сквозь субволновую апертуру обеспечивает высокую чувствительность при определении плазмонного резонанса индивидуальной частицы. Высокая чувствительность обусловлена тем, что фазовая информация, зашифрованная в виде интенсивности, собирается в дальней зоне [Mikhailovsky et al., 2004]. Такой подход основан на факте, что свет, рассеянный частицей в прямом направлении, интерферирует (с усилением или ослаблением) со светом, который приходит из апертуры [Batchelder and Taubenblatt, 1989]. На рис. 10.3 показана схема экспериментальной установки и спектры излучения белого света, проходящего сквозь апертурный зонд. На рис. 10.4а представлены топографическое и ближнепольное оптическое изображения золотых наночастиц.

Исследование процесса рассеяния и поглощения с помощью модели вынужденных гармонических колебаний прогнозирует контрастное обращение ближнепольного изображения вследствие перехода от ослабляющей к усиливающей интерференции при ω_{sp} (рис. 10.4б). Из главы 5 мы знаем, что в окрестности резонанса наблюдается фазовый сдвиг ϕ между полем возбуждения и откликом электронов с $\phi(\omega_{\text{sp}}) = \pi/2$. Анализ ближнепольных изображений, полученных на разных частотах, позволяет определить ω_{sp} для частиц разного размера (рис. 10.4с).

Хотя ближнепольная оптическая микроскопия в режиме экстинкции обеспечивает хорошее пространственное разрешение для локальной спек-

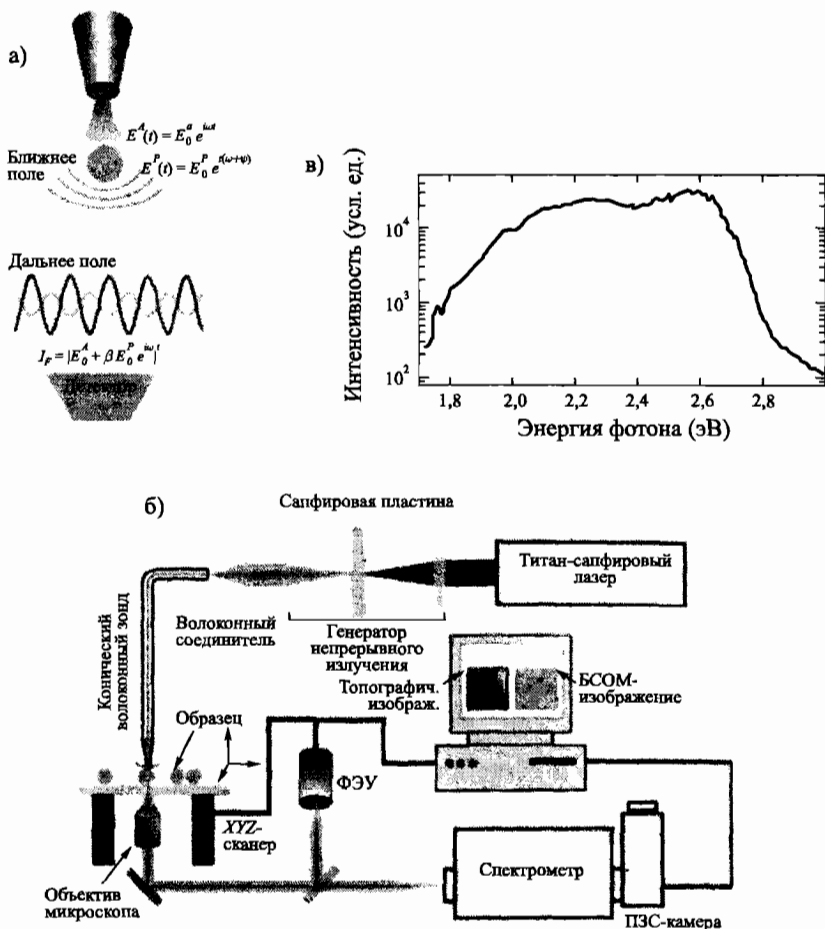


Рис. 10.3. Геометрия возбуждения (а) и экспериментальная установка (б) для ближнепольной оптической микроскопии с белым освещением. (в) Спектр излучения белого света на конце волоконного острья [Mikhailovsky et al., 2003]. © Optical Society of America, 2003. Используется с разрешения правообладателя

троскопии, введение оптического зонда в ближнее поле частицы служит ограничением для практической реализации сенсорных датчиков. В жидком окружении часто приходится отслеживать образование связей с реагентом, что серьезно нарушает устойчивость зонда при его движении. Более

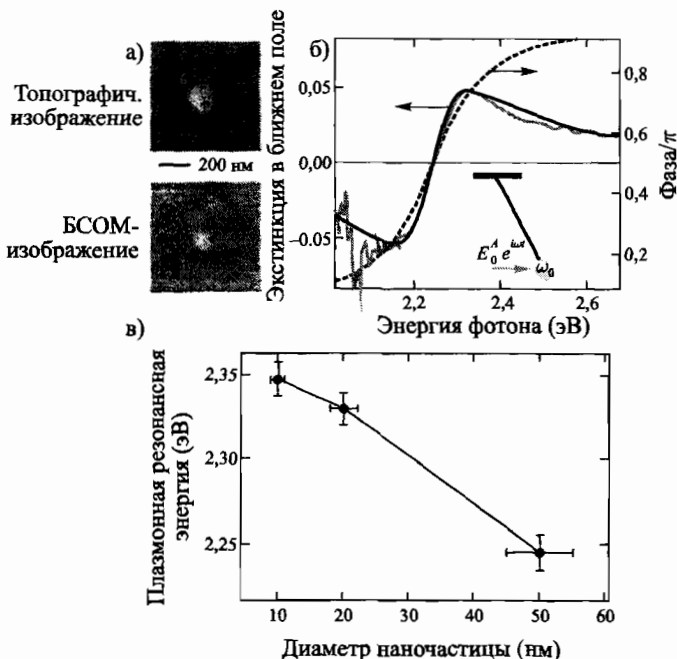


Рис. 10.4. (а) Топографическое и ближнепольное изображения золотой сферы диаметром 50 нм. (б) Ближнепольный спектр экстинкции (сплошная серая кривая) в сравнении со спектром интерференции (черная кривая) и фазовым спектром (пунктирная кривая) для одиночной золотой частицы диаметром 50 нм; спектры вычислены с помощью теоретических моделей вынужденных гармонических колебаний. (в) Зависимость резонансной частоты от размера частицы, вытекающая из анализа спектров [Mikhailovsky et al., 2003]. © Optical Society of America, 2003. Используется с разрешения правообладателя

того, поскольку ближнепольная оптическая микроскопия позволяет определить оптические свойства лишь вблизи поверхности, локальные измерения металлических наночастиц внутри клеточных тел невозможны. Более подходящей для таких целей геометрией является *темнопольная оптическая микроскопия* — это дальнепольная технология с улавливанием света, рассеянного наночастицей. Использование темнопольного конденсатора препятствует собиранию света, переданного в прямом направлении. Следовательно, в темнопольных изображениях металлические наночастицы раскрашиваются в яркие цвета в зависимости от резонансной частоты ω_{sp} по-

перечного сечения рассеяния (5.13). На рис. 10.5с представлено типичное темнопольное изображение одиночных золотых наночастиц. Отметим, что из-за ограничения, накладываемого дифракционным пределом фокусирования светового пятна, высокая чувствительность (позволяющая детектировать отдельные частицы) достигается лишь в случае достаточно больших интервалов между наночастицами.

Пример отслеживания молекулярного связывания изображен на рис. 10.5 и 10.6 [Raschke et al., 2003]. Если покрыть золотую наночастицу бычьим сывороточным альбумином, то частота ω_{sp} сместится в красную область спектра вследствие выборочного связывания частицы с молекулами стрептавидина (рис. 10.5б). Связывание отслеживается в режиме реального времени путем регистрации резонансных сдвигов (рис. 10.6). Насыщение достигается в условиях полного покрытия частицы.

В рамках аналогичного исследования на основе одиночных наночастиц серебра чувствительность может достигнуть порядка нескольких зептомолей. Уже появились первые приборы для медицинских исследований [Haes et al., 2004].

Дальнейшее повышение чувствительности было предсказано для одночастичных сенсоров, в которых можно изменять форму резонансной линии. Изменение может осуществляться за счет использования металлических наноболочек [Raschke et al., 2004], сформированных массивов частиц, и ближнепольного связывания с образованием горячих зон [Epoch et al., 2004]. Кроме того, форму резонансной линии можно изменять за счет использования протяженной пленки, на которой располагается частица, и тогда плазмон частицы будет связываться с распространяющимися поверхностными плазмон-поляритонами [Chen et al., 2004]. Использование наночастиц удлиненной формы также делает датчики ориентации более чувствительными к поляризации [Sonnichsen and Alivisatos, 2005].

Вследствие хорошей биологической совместимости и развитой поверхностной химии золотых наночастиц они широко используются при построении клеточных изображений. В рамках соответствующих исследований наночастицы играют роль маркирующего реагента, с помощью которого отслеживаются одиночные молекулы или молекулярные комплексы. Для получения изображений могут использоваться разные технологии оптической микроскопии, такие как темнопольное освещение, микроскопия по методу дифференциального интерференционного контраста или освещение с полным внутренним отражением. Первые эксперименты на живых организмах по извлечению спектроскопической информации, подобные описанным выше исследованиям на базе частиц, уже успешно проводились [El-Sayed et al., 2005].

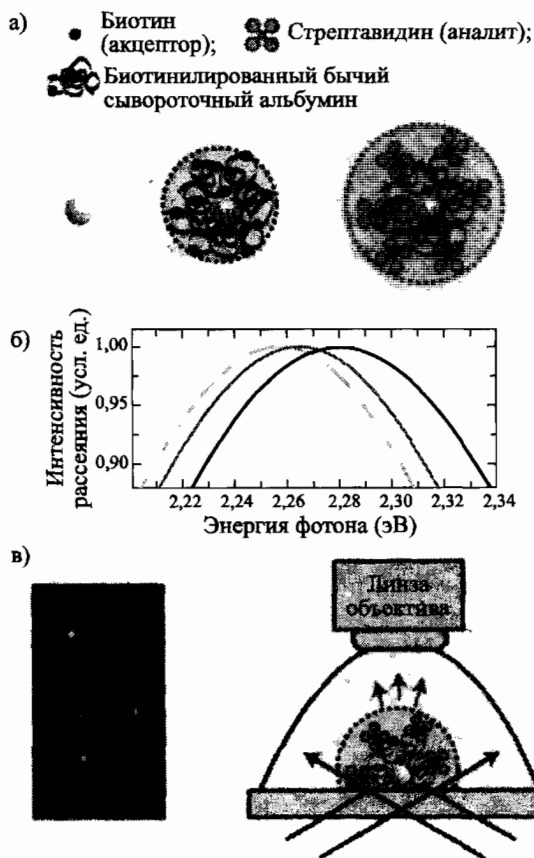


Рис. 10.5. (а) Принцип работы биосенсора на основе одиночной наночастицы, который отслеживает выборочное связывание молекулы стрептавидина и золотой наночастицы, покрытой бычьим сывороточным альбумином. (б) Вычисление спектров рассеяния для «непомеченной» частицы, частицы, покрытой бычьим сывороточным альбумином, и частицы, покрытой бычьим сывороточным альбумином, связанным со стрептавидином; в случае каждого слоя покрытия наблюдаются красные смещения резонанса. (в) Темнопольные изображения и траектория обнаружения [Mikhailovsky et al., 2003]. © American Chemical Society, 2003. Используется с разрешения правообладателя

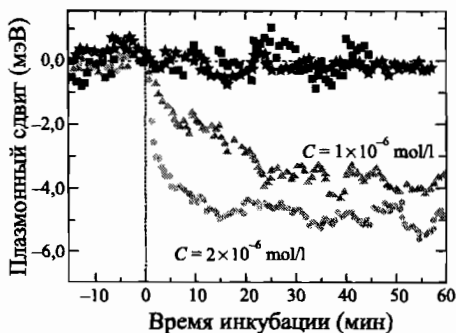


Рис. 10.6. Резонансный сдвиг в зависимости от инкубационного времени связывания стрептавида и бычьего сывороточного альбумина для разных значений концентрации C стрептавида в момент времени $t = 0$; контрольные эксперименты [Raschke et al., 2003]. © American Chemical Society, 2003. Используется с разрешения правообладателя

Стоит, однако, заметить, что темнопольная микроскопия и другие технологии, основанные на детектировании рассеянного света, не подходят для обнаружения очень малых наночастиц, диаметр которых не превышает $d \approx 40$ и которые находятся в окружении рассеивателей. Такое окружение дает, например, биологическая клетка. Почему не подходят? Потому, что поперечное сечение рассеяния уменьшается пропорционально величине d^6 с уменьшением диаметра частицы (см. главу 5). Как правило, рассеивающий сигнал от частиц в режиме малых размеров полностью перекрывается сигналом от более крупных рассеивателей. Чтобы оптически заметить признаки частиц очень маленьких размеров, необходимо применять иной метод микроскопии: основанный на *поглощении*, а не рассеянии частиц. Согласно теории Ми, сечение поглощения изменяется пропорционально величине d^3 с изменением диаметра частиц, поэтому субволновые частицы (с диаметром 10 нм) можно обнаружить в окружении более крупных частиц по технологии *фототермического* получения изображений [Boyer et al., 2002]. На рис. 10.7 показана оптическая установка, основанная на такой технологии. Она состоит из луча нагрева и более слабого зондирующего луча, который детектирует тепловые изменения, обусловленные поглощением, вокруг металлических наночастиц. Красный зондирующий луч расщепляется на две составляющие с ортогональными поляризациями. Затем оба луча фокусируются на образце на дифракционно-ограниченных пятнах, расположенных на расстоянии порядка 1 мкм друг от друга. Луч нагрева перекрывается с одним из зондирующих лучей, в результате чего

его поляризация изменяется под воздействием теплоты. Рекомбинация двух зондирующих лучей приводит к модуляции интенсивности светового потока. С помощью сканирующей системы строится изображение исследуемого образца. На рис. 10.8 показаны снимки, полученные на живых организмах по этой технологии. Для сравнения также показаны снимки рассеяния и флуоресценции для биологических клеток с внедренными в них золотыми наночастицами. Видим, что пространственное разрешение улучшилось за счет обнаружения одиночных частиц.

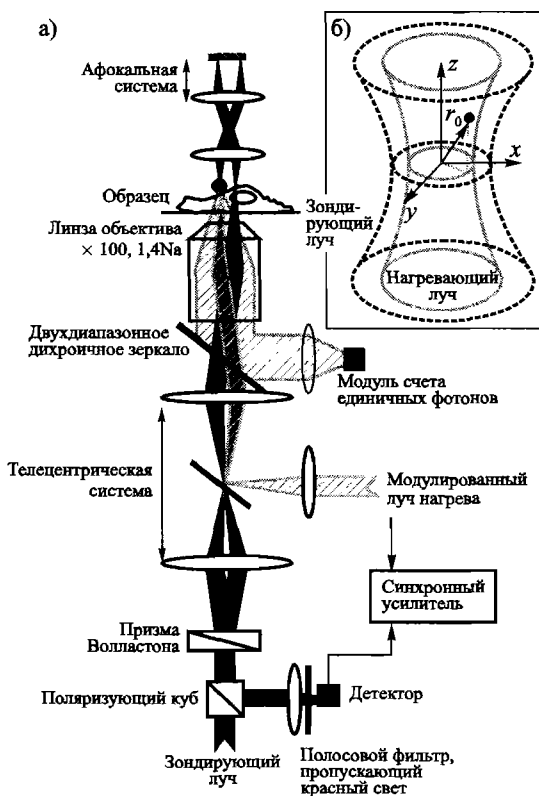


Рис. 10.7. Экспериментальная установка для фототермического получения изображений очень маленьких наночастиц (описание смотрите в тексте) [Cognet et al., 2003]. © National Academy of Sciences, U.S.A., 2003. Используется с разрешения правообладателя

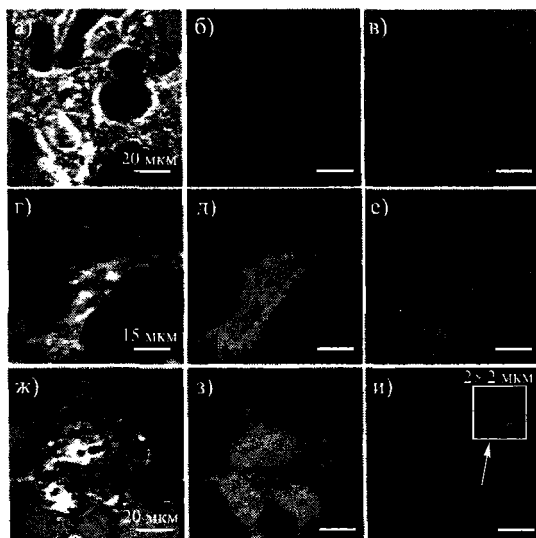


Рис. 10.8. Снимки рассеяния (а, г, ж), флуоресценции (б, д, з) и фототермические изображения (в, е, и) клеток. Все клетки трансфицируются золотыми наночастицами, функционализированными в мембранные белки (для а–е в концентрации 10 мкм/л, для в–и в концентрации 0,5 мкг/л). Клетки на рисунках а–в не выявляют белок, а клетки на рисунках г–и выявляют белок и, следовательно, связывают частицы. Рисунки ф и и, полученные фототермическим способом, имеют наибольшее разрешение [Cognet et al., 2003]. © National Academy of Sciences, U.S.A., 2003. Используется с разрешения правообладателя

Прежде чем двигаться дальше, расскажем еще об одной важной технологии спектроскопического исследования локализованных поверхностных плазмонов. Эта технология основана на возбуждении в условиях воздействия электронного пучка. В *катодоллюминесценции* испускание фотонов металлической наноструктурой, которая подвергается исследованию, осуществляется электронным пучком высокой энергии. Собираются же фотоны с использованием специальных устройств [Yamamoto et al., 2001]. В качестве примера на рис. 10.9 (вверху) изображен спектр серебряной частицы диаметром 140 нм, которая возбуждается электронным пучком, падающим под малым углом к поверхности; энергия пучка составляет 200 кэВ. Для сравнения на рисунке показаны результаты теоретических расчетов. Частица имеет большие размеры, поэтому различимы признаки как квадрупольной, так и дипольной моды. Описанная технология обладает одним важ-

ным свойством: путем сканирования электронного пучка по поверхности частицы можно отобразить пространственный профиль мод через собирание света при соответствующей длине волны пикового излучения (рис. 10.9, снизу). С помощью этой же технологии можно возбуждать и исследовать распространяющиеся поверхностные плазмон-поляритоны.

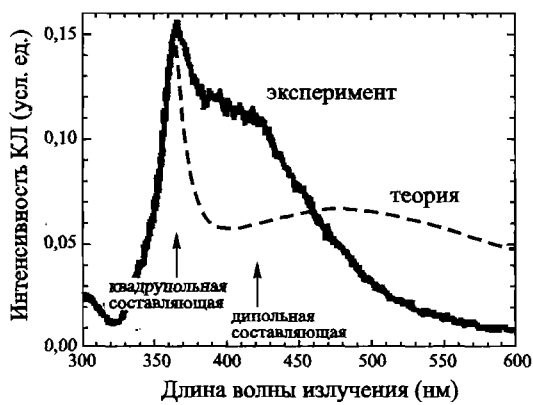


Рис. 10.9. Катодолюминесцентное изображение и спектроскопия локализованных поверхностных плазмонов. Сверху: катодная люминесценция (КЛ) от 140-нанометровой частицы серебра, индуцированная прохождением электронов (с энергией 200 кэВ) по скользящей траектории (электронный пучок лишь слегка касается поверхности частицы). В спектре можно разделить дипольную и квадрупольную составляющие. Снизу, слева направо: полученное с помощью сканирующего электронного микроскопа изображение этой же частицы; скорость КЛ как функция положения электронного пучка, сканируемого над частицей, при длине волны излучения, соответствующей дипольной составляющей спектра; теоретический прогноз последнего. За представленные рисунки я благодарен Н. Ямамото и Ф. Х. Гарсиа-де-Абайо, с которыми лично общался

Все рассмотренные выше технологии одночастичной спектроскопии основаны на микроскопии и потому в общем случае не подходят для сенсорного зондирования вне лаборатории, например в контексте мониторинга окружающей среды. Для этого подходят сенсоры на базе спектроскопии

локализованных плазмонов частиц. Такие датчики разработаны в области сенсорного исследования с использованием оптических волокон. Типичная геометрия такова: металлические наночастицы фиксируются на конце оптического волокна, отраженный свет в условиях освещения белым светом собирается через волокно и спектрально разрешается [Mitsui et al., 2004]. Если поместить острие с прикрепленной к нему частицей в исследуемую среду, то тем самым можно измерить показатель преломления газообразного или жидкого реагента.

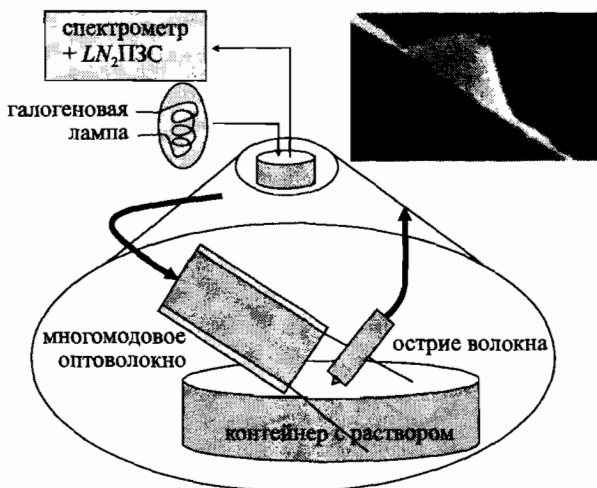


Рис. 10.10. Оптическая установка для измерения рассеяния одной наночастицы, прикрепленной к острию волокна, в различных сольвентах. На рисунке-вкладке показано СЭМ-изображение наночастицы, прикрепленной к острию волокна [Eah et al., 2005]. © American Institute of Physics, 2005. Используется с разрешения правообладателя

Eah и его коллеги недавно добились с помощью этой технологии чувствительности к одиночным частицам [Eah et al., 2005]. На рис. 10.10 схематично изображена использованная ими оптическая установка. К острию волоконного зонда крепится наночастица золота: она забирается острием непосредственно с плоской поверхности, покрытой металлическими коллоидами. В установке используется внешнее освещение с применением второго многомодового волокна. Рассеянный сигнал собирается волоконным зондом. На рис. 10.11 показаны типичные спектры для случаев, когда частица погружается в растворы с разными показателями преломления.

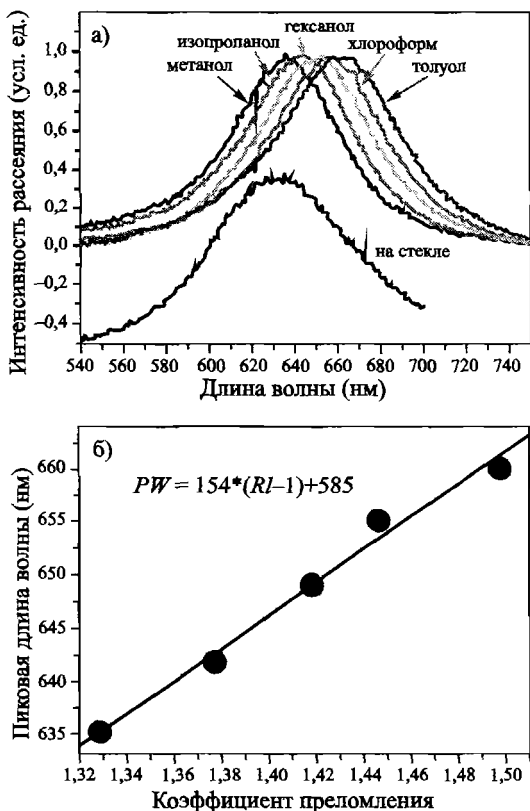


Рис. 10.11. (а) Нормированные спектры рассеяния одиночной золотой наночастицы в различных растворителях, измеренные с помощью волокна. (б) Зависимость резонансного положения от коэффициента преломления растворителя [Eah et al., 2005]. © American Institute of Physics, 2005. Используется с разрешения правообладателя

10.2. Сенсоры на базе поверхностных плазмон-поляритонов

Большинство сенсорных исследований на базе поверхностных плазмонов, проводимых в последнее время, основаны не на спектроскопическом определении плазмонного резонанса в частице, а на анализе распространяющихся волн поверхностных плазмон-поляритонов на границе металл/воздух. Изменяя поверхность, можно добиться связывания со спе-

циальным реагентом путем изменения показателя преломления верхнего металлического слоя и, следовательно, дисперсионного отношения распространяющихся поверхностных плазмон-поляритонов. Тогда, анализируя изменение условия фазовой синхронизации, можно отслеживать образование связей. Изменения условия фазовой синхронизации регистрируются по изменению либо длины волны, либо угла. По традиции в сенсорных устройствах возбуждение световыми лучами поверхностных плазмон-поляритонов проводят по технологиям призмного или решеточного ввода излучения, описанным в главе 3. Обзор этих технологий в контексте сенсорных исследований смотрите в работе Хомолы и его коллег [Homola et al., 1999].

Поскольку призмное и решеточное возбуждение мы подробно рассмотрели в главе 3, а также ввиду простой их реализации в сенсорных устройствах, сделаем лишь ряд замечаний, касающихся усовершенствования этих стандартных технологий с точки зрения увеличения сенсорной чувствительности. В общем случае эффективность сенсора на базе поверхностных плазмон-поляритонов возрастает с изменением объема занимаемого полем и длины затухания L (заметим, что увеличение одного ведет к снижению другого). В качестве примера использования структур с малым затуханием поверхностных плазмон-поляритонов можно привести многослойные геометрии, полезные с точки зрения сенсорных измерений, и геометрии, основанные на призмном вводе дальнедействующих мод и потому обеспечивающие высокую чувствительность [Nenninger et al., 2001].

Дальнейшего усовершенствования сенсорных датчиков можно добиться, если принять во внимание тот факт, что в условиях призмного возбуждения фаза отраженного поля изменяется с изменением условия фазовой синхронизации для возбуждения поверхностных плазмон-поляритонов. Аналогичную связь мы отмечали в предыдущем разделе, когда рассматривали получение ближнепольных изображений локализованных мод, чувствительных к изменению фазы. Если в качестве входного луча применить ТЕ- и ТМ-составляющие излучения, то чувствительность сенсорного устройства существенно возрастает, что и продемонстрировали Хупер и Самблес [Hooper and Sambles, 2004b]. Такое высокочувствительное устройство в состоянии регистрировать изменения показателя преломления порядка 2×10^{-7} . На рис. 10.12 изображена экспериментальная установка, в которой изменения эллипса поляризации можно дифференциально детектировать, если варьировать поляризацию входного луча. При этом фазовые изменения ТМ-составляющей входного луча, индуцированные изменениями показателя преломления верхнего слоя, обнаруживаются по изменениям поляризации отраженного светового луча. На рис. 10.13 показаны результа-

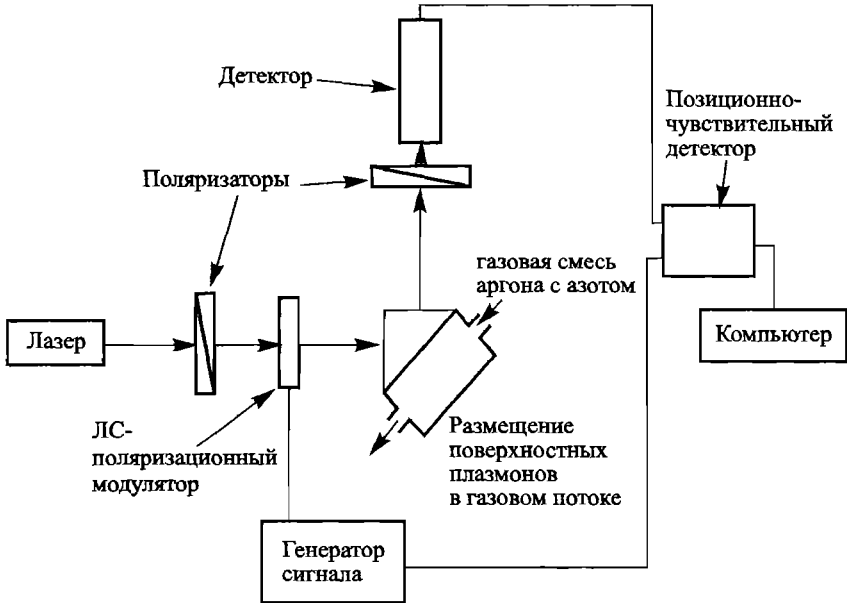


Рис. 10.12. Экспериментальная установка для дифференциального эллипсометрического обнаружения изменений показателя преломления с помощью поверхностных плазмон-поляритонов, возбуждаемых на металлической пленке призмным способом [Hooper and Sambles, 2004b]. © American Institute of Physics, 2004. Используется с разрешения правообладателя

ты вращения плоскости поляризации в зависимости от соотношения газов в смеси.

Хотя возбуждение поверхностных плазмон-поляритонов призмным или решеточным способом удобно использовать для демонстрации работы сенсоров на базе поверхностных плазмон-поляритонов, с точки зрения интегрирования лучше использовать *волноводные* сенсоры на базе поверхностных плазмон-поляритонов, которые дают фазовую синхронизацию с волноводной модой в проводящем слое, расположенном под освещаемой металлической поверхностью. В частности, интерес представляет оптико-волоконный резонансный сенсор на базе поверхностных плазмон-поляритонов. Это устройство можно использовать в полевых условиях [Slavik et al., 1999]. Обычно этот сенсор состоит из одно- или многомодового оптического волокна, с одной стороны отполированного до сердцевинки. Если на этом участке покрыть волокно тонким металлическим слоем, то

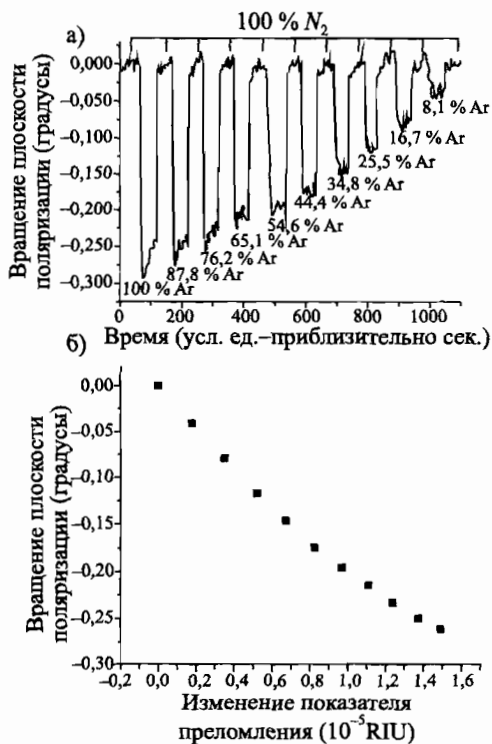


Рис. 10.13. (а) Вращение плоскости поляризации для разных значений газового фактора. (б) Вращение плоскости поляризации как функция коэффициента преломления [Hooper and Sambles, 2004b]. © American Institute of Physics, 2004. Используется с разрешения правообладателя

мода, распространяющаяся по сердцевине волокна, возбуждит поверхностные плазмон-поляритоны, признаки которых можно заметить, если наблюдать за светом, распространяющимся на участке взаимодействия [Notola et al., 1997]. Этот подход очень прост, поэтому метод волоконного возбуждения широко используется в исследовании сенсоров на базе поверхностных плазмон-поляритонов.

На рис. 10.14b схематично изображен срез типичного сенсорного участка многомодового оптоволокна. Оголить сердцевину можно не только полировкой, но и травлением и заострением волокна. Применение

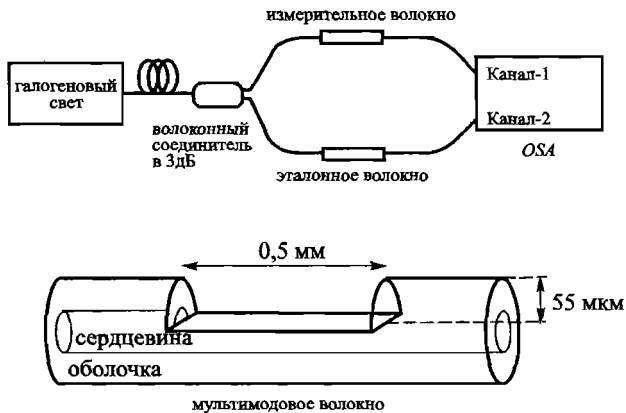


Рис. 10.14. Сенсор на базе поверхностных плазмон-поляритонов, в котором используется многомодовое оптоволокно. (а) Схема сенсорной системы, состоящей из измерительного и эталонного волокон, отполированных с одной стороны. (б) Схематичное изображение отполированных с одной стороны волокон [Tsai et al., 2005]. © Optical Society of America, 2005. Используется с разрешения правообладателя

источника белого света, т. е. избирательности по длине волны, — очень распространенный подход, так как современные источники излучения, такие как волоконные источники сверхнепрерывного излучения, легко интегрируются прямо в сенсорное (измерительное) волокно. В целях повышения чувствительности используются комбинации измерительного и эталонного волокон (рис. 10.14а), которые позволяют проводить интерферометрическое обнаружение и анализ разностного сигнала [Tsai et al., 2005].

Рассмотрим в качестве примера сенсорное устройство, в котором измерительное и эталонное волокна с одной стороны отполированы и металлизированы слоем золота толщиной 40 нм. Эталонное волокно погружается в дистиллированную воду, а измерительное волокно — в жидкость с другим показателем преломления. На рис. 10.15а видно, как разность в световой интенсивности для двух волокон зависит от длины волны. Интенсивность излучения одинакова для обоих волокон в тот момент, когда две кривые поверхностных плазмон-поляритонов пересекаются в одной точке. Это говорит о сильной чувствительности к разнице между показателями преломления сред, в которые погружаются волокна (рис. 10.15б). Можно добиться высокой чувствительности сенсорного измерения показателя преломления (с точностью до 10^{-6}). Геометрию сенсорного участка можно улучшить, если применить более совершенные технологии полирования [Zhang et al.,

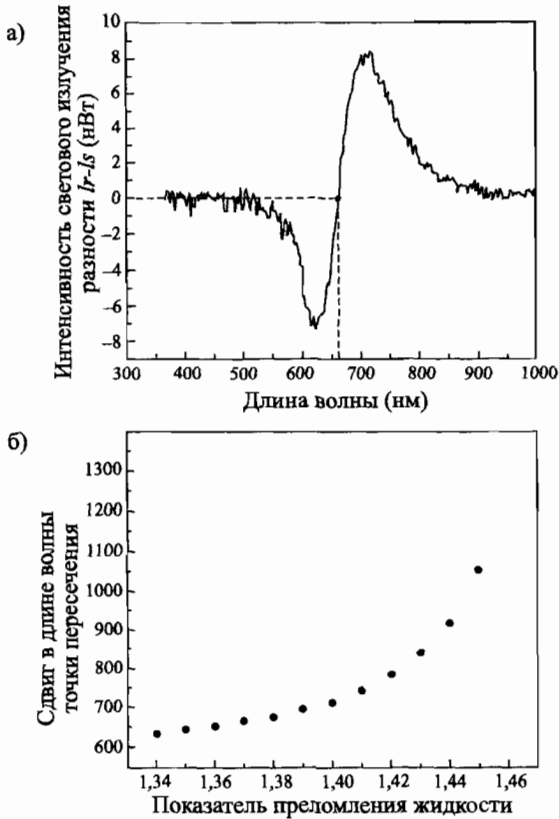


Рис. 10.15. (а) Отличие в интенсивности светового излучения между измерительным и эталонным волокнами в зависимости от оптической длины волны при использовании SPP-волоконной сенсорной структуры, изображенной на рис. 10.14. Измерительное волокно погружено в этиловый спирт, эталонное волокно погружено в дистиллированную воду. (б) Экспериментальные данные, полученные для сдвига в длине волны, соответствующей пересечению двух спектров поверхностных плазмон-поляритонов, в зависимости от показателя преломления [Tsai et al., 2005]. © Optical Society of America, 2005. Используется с разрешения правообладателя

2005] или заострения волокон [Kim et al., 2005]. Пределы чувствительности непрерывно расширяются, так что сенсоры на базе поверхностных плазмон-поляритонов стоят во главе оптико-сенсорных устройств.

Поверхностные плазмон-поляритоны можно возбуждать с помощью оптических волокон, равномерно покрытых концентрическим слоем металла. Для узких конусов такой подход ведет к образованию гибридных мод с интересными свойствами волоконной моды и моды поверхностных плазмон-поляритонов [Al-Bader and Imtaar, 1993; Pradeand Vinet, 1994]. Мы не будем подробно останавливаться на этих гибридных модах, лишь отметим, что недавно их существование было подтверждено экспериментально [Diez et al., 1999], и их успешно удалось применить в сенсорных устройствах [Monzon-Hernandez et al., 2004].

ГЛАВА 11

Метаматериалы, получение изображений с помощью поверхностных плазмон-поляритонов

В последние два десятилетия исследовался вопрос электромагнитного отклика материалов, содержащих периодические вариации структур и составов. В качестве примеров можно привести *фотонные кристаллы* — диэлектрические материалы с периодической модуляцией (вещественнозначного) показателя преломления $n = \sqrt{\epsilon}$, что достигается путем включения в среду-носитель рассеивающих элементов с диэлектрической проницаемостью, отличной от исходной среды. Таким образом можно регулировать дисперсионное соотношение для электромагнитных волн, распространяющихся внутри искусственной среды, и создавать в частотном интервале зоны, запрещенные для распространения волн. В фотонных кристаллах размер и периодичность модуляций показателя преломления имеют порядок длины волны λ , распространяющейся в материале. В главе 7 было показано, что существует аналог этого подхода, построенного на поверхностных плазмон-поляритонах, — металлическая поверхность с периодической решеткой выступающих над поверхностью элементов, позволяющая регулировать распространение волн.

К другому типу искусственных материалов с регулируемым фотонным откликом относятся *метаматериалы*. В отличие от фотонных кристаллов, размер и периодичность рассеивающих элементов на поверхности метаматериала значительно меньше длины волны λ , поэтому их в некотором смысле можно рассматривать как микроскопические строительные блоки для создания искусственного материала подобно тому, как из атомов строятся природные материалы. Рассуждая так же, как при переходе от микроскопических ураниений Максвелла к макроскопической их форме, электромагнитный отклик метаматериала можно описать на основе *эффективной* диэлектрической проницаемости $\epsilon(\omega)$ и магнитной проницаемости $\mu(\omega)$. Поскольку в субволновом масштабе электрическое и магнитное поля не

связаны между собой, значения величин $\varepsilon(\omega)$ и $\mu(\omega)$ можно регулировать независимо друг от друга с помощью рассеивателей подходящей формы.

Гофрированные поверхности с идеальной проводимостью, рассмотренные в главе 6, являются примерами метаматериала с искусственно создаваемым электрическим откликом $\varepsilon(\omega)$. Мы показали, что такую поверхность можно описать как эффективную среду с плазменной частотой ω_p , которая регулируется геометрией. В первой части данной главы мы рассмотрим другие примеры метаматериалов, уделив особое внимание тому, как с помощью решетки немагнитных составляющих, период которой меньше длины волны, добиться магнитного отклика. Подходящим образом сконструировав материалы, можно добиться того, чтобы значения $\varepsilon(\omega)$ и $\mu(\omega)$ в определенном частотном диапазоне были отрицательными. Тогда мы получим *отрицательный показатель преломления* $n = \sqrt{\mu\varepsilon}^1$.

Мы лишь кратко обсудим физику, лежащую в основе метаматериалов, в частности, метаматериалов с отрицательным показателем преломления, и бегло рассмотрим попытки современных исследователей добиться $n < 0$ на оптических частотах. Мы покажем, что решетки металлических наночастиц, поддерживающие локализованные плазмонные резонансы, могут иметь перспективу для создания подобных структур. Более подробно о метаматериалах можно прочитать в специализированных статьях, например [Smith et al., 2004].

Одна из самых интригующих возможностей материалов с отрицательным показателем преломления — получение изображений с субволновым разрешением. Используемый для этих целей материал получил условное название *идеальной линзы*. Во второй части данной главы рассмотрены попытки продемонстрировать действие идеальной линзы на оптических частотах в экспериментах по возбуждению поверхностных плазмон-поляритонов в тонких металлических пленках.

11.1. Метаматериалы и отрицательный показатель преломления на оптических частотах

Концепция создания композитных материалов с желаемыми электромагнитными свойствами дает новые возможности для регулирования электромагнитного излучения в микроволновом и терагерцовом диапазонах частот. В главе 6 мы подробно говорили о том, как с помощью подходящего субволнового структурирования металлической поверхности добиться

¹Значение квадратного корня необходимо взять со знаком минус, так как в такого рода материале векторы фазовой и групповой скорости волны противоположно направлены.

в указанном частотном диапазоне плазменной частоты ω_p , определяемой геометрией. Другой важный пример метаматериала, поддерживающего низкочастотные плазмоны, — это регулярная трехмерная решетка металлических проводов с диаметром порядка микрона [Pendry et al., 1996]. Электрический отклик такой структуры можно рассматривать как электрический отклик эффективной среды с плотностью свободных электронов, определяемой той частью пространства, которую занимает материал. Как и в случае структур, рассмотренных в главе 6, эффективное значение $\varepsilon(\omega)$ решетки проводов определяется аналогичной формулой (1.20), в которой следует использовать значение ω_p из микроволнового частотного диапазона. Диэлектрический отклик решетки проводов на микроволновое излучение подобен отклику металла на оптических частотах.

Таким образом, одной из мотиваций для конструирования метаматериалов послужило стремление сдвинуть резонансы природных материалов (в частности, металлов), которые определяются через $\varepsilon(\omega)$, в область более низких частот. Другой мотивацией, напротив, послужило стремление создать магнитные резонансы, определяемые через $\mu(\omega)$, на более высоких частотах по отношению к частотам в природных магнитных материалах. Итак, интересующая нас область частот лежит в пределах между терагерцовым и видимым диапазонами спектра.

Если магнетизм природных магнитных материалов объясняется существованием непарных электронных спинов [Kittel, 1996], то магнетизм метаматериалов обусловлен главным образом индуцированными геометрией резонансами или плазмонными эффектами субволновых строительных блоков, из которых состоят метаматериалы. Особенно полезным с этой точки зрения является резонатор в форме разрезного кольца, простейшая геометрия которого изображена на рис. 11.1. Этот резонатор состоит из двух плоских концентрических проводящих колец, каждое из которых имеет разрез. В работе Пендри и его коллег было показано, что регулярный массив таких структур (с периодом решетки и структурным размером, гораздо меньшими, чем длина волны рассматриваемого диапазона) обладает магнитным откликом [Pendry et al., 1999].

Простое объяснение состоит в том, что изменяющееся во времени магнитное поле индуцирует в резонаторе из разрезных колец магнитный момент из-за токов, текущих по круговым траекториям. Изначально слабый магнитный отклик усиливается резонансом: структура выполняет роль субволнового контура LC с индукцией L и емкостью C . Следовательно, при частоте $\omega_{LC} = 1/\sqrt{LC}$ магнитная проницаемость μ выявляет резонанс. Как и во всех резонансных процессах, при частотах, лишь слегка превышающих значение ω_{LC} , выполняется условие $\mu < 0$. Чуть позже мы узна-

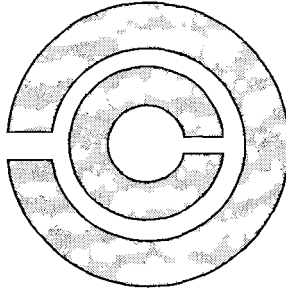


Рис. 11.1. Схематичное изображение резонатора из двух разрезных колец, который используется для инжиниринга магнитной проницаемости $\mu(\omega)$ метаматериала

ем, что обсуждаемая структура с одновременным использованием массивов проводов позволяет создавать метаматериалы с отрицательными диэлектрической и магнитной проницаемостями и, стало быть, отрицательным показателем преломления.

Вслед за первыми демонстрациями на микроволновых частотах (приведенными в работе [Smith et al., 2004]), исследователи продемонстрировали действие метаматериалов, магнитный отклик в которых создается резонаторами из разрезных колец в терагерцовом режиме [Yen et al., 2004]. Эффективная магнитная проницаемость, полученная по результатам замеров, может быть представлена по формуле Лоренца

$$\mu(\omega) = 1 - \frac{F\omega^2}{\omega^2 - \omega_{LC}^2 + i\Gamma\omega}, \quad (11.1)$$

где ω_{LC} — резонансная частота, а F — геометрический фактор. Величина Γ характеризует потери на сопротивление в резонаторе из разрезных колец. Как и в обычном резонансе, при $\omega \ll \omega_{LC}$ индуцированный магнитный диполь синфазен с полем возбуждения. В этом диапазоне частот метаматериал показывает парамагнитный отклик. При более высоких частотах токи начинают отставать от поля возбуждения, и при $\omega \gg \omega_{LC}$ дипольный отклик не совпадает по фазе с полем возбуждения. В этом диапазоне метаматериал является диамагнетиком ($\mu < 1$). В области частот, несколько превышающих значение ω_{LC} , магнитная проницаемость отрицательна ($\mu < 0$). Заметим, что магнитный диполь является не более чем *индуцированным диполем* (постоянного магнитного момента нет).

Из наших рассмотрений, касающихся метаматериалов с искусственно созданным электрическим или магнитным откликом, следует, что для

материала, состоящего из решетки резонаторов в форме разрезных колец и металлических проводов или стержней, должен существовать диапазон частот, в котором одновременно $\varepsilon < 0$ и $\mu < 0$, а значит, и $n < 0$. Шелби и его коллеги продемонстрировали действие такого метаматериала с отрицательным показателем преломления на микроволновых частотах [Shelby et al., 2001]. Позже Смит и его коллеги подтвердили возможность отрицательного преломления в эксперименте с клиновидной структурой [Smith et al., 2004]. Хотя в рамках этого исследования использовался трехмерный метаматериал, из резонаторов в форме разрезных колец и стержней можно создавать плоские структуры, эффективно работающие на терагерцевых частотах, применяя при этом технологию микрообработки [Moser et al., 2005].

На микроволновых и терагерцевых частотах метаматериалы, приведенные выше, состоят из проводящих материалов, удовлетворяющих условию обратной пропорциональности резонансных частот от размера метаматериала: $\omega_{LC} \propto 1/a$, где a — размер резонатора в форме разрезного кольца. Тем не менее на более высоких частотах это условие нарушается, отклик металла становится менее идеальным, появляется необходимость корректного учета электронов металла. По результатам теоретических исследований предполагается, что такая ситуация приведет в итоге к насыщению роста ω_{LC} для частот $f > 100$ ТГц ($\lambda_0 < 3$ мкм) [Zhou et al., 2005]. Используя резонаторы из золотых разрезных колец, минимальный размер которых составил 35 нм, Клейн и его коллеги доказали возможность смещения резонанса для μ к длине волны $\lambda = 900$ нм из ближней инфракрасной области спектра. До сих пор не ясно, как сильно можно, опираясь на эту концепцию, увеличить резонансную частоту, т. е. как далеко можно сместить ее в область видимого света.

Помимо резонаторов в форме разрезных колец, для создания материала с отрицательным показателем преломления, работающего на частотах ближней инфракрасной области спектра, можно использовать стержневые структуры. Шалаев и его коллеги добились показателя преломления $n = -0,3$ при длине волны $\lambda = 1,5$ мкм, сконструировав стержневые многослойные структуры золото/диэлектрик/золото [Shalaev et al., 2005]. На рис. 11.2 схематично показана такая структура, состоящая из стержней. Также на рисунке есть изображение этой структуры, полученное с помощью сканирующего электронного микроскопа и схема решетки метаматериала. Каждый стержень состоит из слоя SiO_2 толщиной 50 нм, расположенного между двумя слоями золота толщиной 50 нм каждый. Как и в случае резонатора в форме разрезных колец, магнитный отклик обусловлен, скорее всего, резонансом в контуре LC , состоящем из нижнего и верхнего слоев золота (рис. 11.2а). Металлические стержни обеспечивают индуктивность,

а слой диэлектрика — электрическую емкость. На рис. 11.3 показано изменение показателя преломления такого метаматериала в ближней инфракрасной области спектра. Вблизи частотного интервала $\lambda = 1500$ нм показатель преломления отрицателен: $n < 0$. Обратите внимание, что, в отличие от ранее рассмотренных метаматериалов, размеры единичной ячейки (рис. 11.2с) имеют порядок длины волны. Отметим также, что, как и в случае резонаторов в форме разрезных колец, обратная пропорциональность резонансной частоты характерного размера в видимой области спектра нарушается из-за возрастания потерь и вклада плазмонных эффектов.

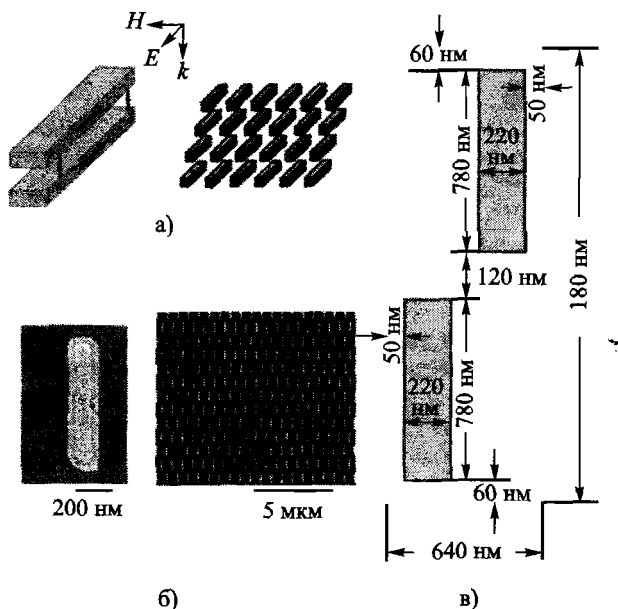


Рис. 11.2. (а) Схематичное изображение и (б) полученное с помощью сканирующего электронного микроскопа изображение плоского метаматериала, состоящего из пар параллельных золотых наностержней. (в) Схема единичной ячейки этой структуры [Shalaev et al., 2005]. © Optical Society of America, 2005. Используется с разрешения правообладателя

Григоренко и его коллеги провели другой эксперимент и также продемонстрировали в его рамках действия метаматериала с отрицательной магнитной проницаемостью в видимой области спектра. Метаматериал состоял из пар куполовидных золотых наночастиц [Grigorenko et al., 2005].

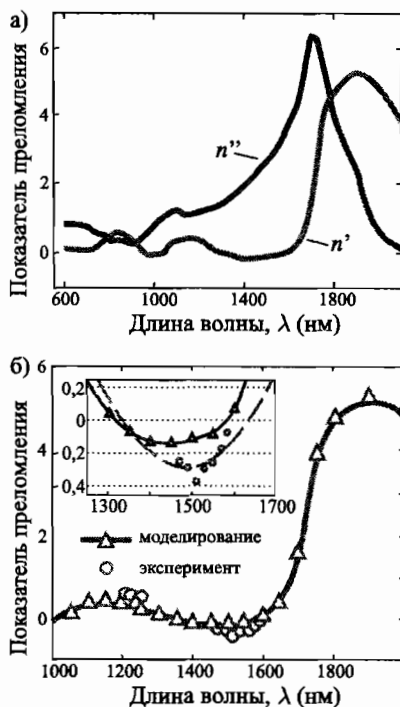


Рис. 11.3. (а) Действительная и мнимая составляющие n' , n'' показателя преломления для метаматериала, изображенного на рис. 11.2, полученные путем моделирования. (б) Сравнение результатов моделирования (треугольники) и эксперимента (кружки) для действительной составляющей показателя преломления. На рисунке-вкладке показано увеличенное изображение области отрицательных значений показателя преломления [Shalaev et al., 2005]. © Optical Society of America, 2005. Используется с разрешения правообладателя

Эти пары выполняли роль маленьких стержневых магнитов, а несимметричное согласование локализованных плазмонных резонансов приводило к тому, что магнитная составляющая поля возбуждения сокращалась и выполнялось условие $\mu < 0$. Недавно был предложен еще один метод, основанный на использовании U-образных металлических наночастиц. Этот метод активно использует плазмонный отклик, а не LC-эффекты, поэтому условие $n < 0$ должно, по идее, выполняться на оптических частотах [Sarychev et al., 2006]. Исследования в этой области продолжаются, и уже в ближайшие годы можно ожидать больших успехов.

11.2. Идеальная линза, получение изображений и литография

В конце главы рассмотрим еще одно важное следствие инжиниринга материалов с отрицательным показателем преломления — возможность создания идеальной линзы [Pendry, 2000; Smith et al., 2004]. В 2000 году Пендри показал, что пластина из идеального (без потерь) материала с показателем преломления $n = -1$ в совершенстве воспроизводит изображение объекта, помещенного в ближнее поле с одной стороны пластины, на таком же расстоянии с другой стороны пластины. Вследствие отрицательного преломления свет из точечного источника, находящегося по одну сторону пластины с отрицательным показателем преломления, фокусируется с другой стороны пластины (рис. 11.4). Еще более удивительно то, что все фурье-компоненты двумерного объекта, не только те, что удовлетворяют условию $k_x^2 + k_y^2 < \omega^2/c^2$, могут быть воспроизведены в плоскости изображения. Такая возможность обусловлена резонансным усилением затухающих компонент изображения поверхностными модами пластины с отрицательным показателем преломления [Pendry, 2000].

На оптических частотах при толщине пластины $d \ll \lambda$ действует электростатический предел, и связь между электрическим и магнитным полями существенно нарушается. Можно показать, что в этом случае требование $\mu < 0$ необязательно, так что изображения с субволновым разрешением можно получать с использованием материалов, для которых лишь $\text{Re}[\varepsilon] < 0$, т. е. металлов. Отметим, что в силу затухания ($\text{Im}[\varepsilon] > 0$) часть информации высокого разрешения в процессе построения изображения теряется, поэтому изображение оказывается неидеальным. Такую *не совсем идеальную линзу* можно сконструировать из тонкой серебряной пленки.

Затухающие компоненты полей объекта резонансно усиливаются за счет связывания с поверхностными плазмон-поляритонами, которые существуют на серебряной пленке. На рис. 11.5 показана экспериментальная установка, демонстрирующая получение субволновых изображений. Выгравированная в хромированном фотошаблоне картинка записывается на фоторезистный слой с помощью тонкого слоя серебра [Fang et al., 2005]. На рис. 11.6 показаны изображения, демонстрирующие результаты этого эксперимента, а также контрольного эксперимента в случае, когда серебряная пленка заменяется полимерным слоем. Хотя буквы с толщиной линии 40 нм не были воспроизведены, видно существенное увеличение разрешения в случае, когда используется слой серебра. Дополнительные исследования с применением как однослойных [Melville and Blaikie, 2005], так и двуслойных серебряных структур подтвердили их свойства по увеличению разрешения.

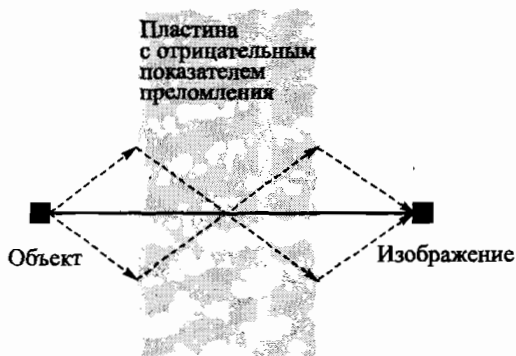


Рис. 11.4. Схематичное изображение плоской линзы с отрицательным показателем преломления. Свет, расходящийся из точечного источника, снова сходится в одной точке в среде с отрицательным коэффициентом преломления в силу отрицательного преломления. С другой стороны пластины формируется еще один фокус

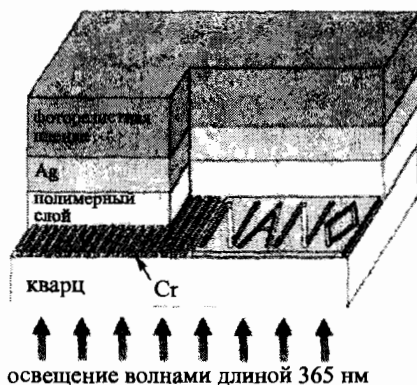


Рис. 11.5. Схематичное изображение оптической суперлинзы. Слой серебра толщиной 35 нм, на котором формируется изображение, отделяется от хромированного фотошаблона полимерным слоем толщиной 40 нм. За счет освещения хромированного фотошаблона ультрафиолетовым светом, изображение, получаемое на слое серебра, записывается на тонкую фоторезистивную пленку [Fang et al., 2005]. © AAAS, 2005. Используется с разрешения правообладателя

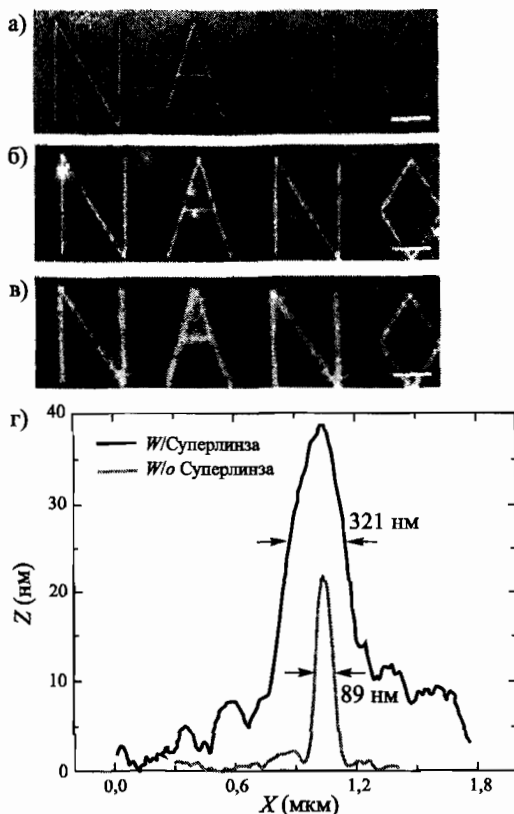


Рис. 11.6. (а) Полученное в режиме фокусируемого луча (FIB) изображение плоскости объекта. Толщина линий, из которых состоят буквы, составляет около 40 нм. (б, в) Полученное с помощью атомно-силовой микроскопии изображение проявленного фоторезиста с серебряным слоем, на котором формируется изображение (рис. 11.5); в случае (б) слой серебра отделяется полимерным слоем, тогда как в случае (в) слой серебра заменяется полимерным слоем. (г) Усредненное поперечное сечение буквы «А» с линзой и без нее [Fang et al., 2005]. © AAAS, 2005. Используется с разрешения правообладателя

Можно ожидать, что рассмотренные идеи окажутся полезными в литографии, в которой не желателен контакт между фоторезистным слоем и фотошаблоном. Тем не менее с учетом ограничений, накладываемых на разрешение со стороны проводящих потерь в слое, в котором формируется изображение, вопрос о технологической пользе рассмотренной концепции

ции остается открытым. Наконец, сделаем еще одно замечание: в работах [Srituravanich et al., 2004; Luo and Ishihara, 2004] был предложен способ создания фотошаблонов, поддерживающих резонансы локализованных плазмонов, которые можно было бы использовать в литографии с разрешением, превышающим классический предел, определяемый дифракцией. В этом случае ближнее поле, создаваемое локализованными модами, обеспечивает усиление экспонирования примыкающего резистного слоя.

ГЛАВА 12

Заключение

Плазмоника — увлекательная область науки, границы исследований которой постоянно расширяются. Я надеюсь, моя книга помогла заинтересованным читателям не только познакомиться с этой областью, но и заложить фундамент для проведения собственных исследований. Представляется очевидным, что разнообразие уже существующих и разрабатываемых технологий субволновой оптики на основе металлов и успешные теоретические и экспериментальные исследования гарантируют интерес к плазмонике.

Куда следует двигаться дальше? Почти по всем аспектам плазмоники, рассмотренным в данной книге, в научной литературе существуют специализированные обзорные статьи. Что касается таких областей, как сенсорное измерение и метаматериаловедение, при рассмотрении которых мы не вдавались в излишние подробности, читателю следует обратиться к превосходным обзорным работам. Помимо этого, в исследованиях весьма полезными могут оказаться оригинальные публикации, некоторые из которых упомянуты в перечне литературы.

Надеюсь, моя книга будет и дальше выполнять свое предназначение: привлекать внимание читателей к увлекательной области нанофотоники. С благодарностью приму любые предложения, касающиеся замечаний и предложений по тексту книги.

Литература

- [1] Adam, P.M., Salomon, L., de Fornel, F., and Goudonnet, J.P. (1993). Determination of the spatial extension of the surface-plasmon evanescent field of a silver film with a photon scanning tunneling microscope. *Phys. Rev. B*, 48(4):2680–2683.
- [2] Al-Bader, S.J., and Imtaar, M. (1993). Optical fiber hybrid-surface plasmon polaritons. *J. Opt. Soc. Am. B*, 10(1):83–88.
- [3] Andreani, L. C., Panzarini, G., and Gérard, J.-M. (1999). Strong-coupling regime for quantum boxes in pillar microcavities: Theory. *Phys. Rev. B*, 60(19):13276.
- [4] Anger, Pascal, Bharadwaj, Palash, and Novotny, Lukas (2006). Enhancement and quenching of single-molecule fluorescence. *Phys. Rev. Lett.*, 96:113002.
- [5] Antoine, Rodolphe, Brevet, Pierre R., Girault, Hubert H., Bethell, Donald, and Schiffrin, David J. (1997). Surface plasmon enhanced non-linear optical response of gold nanoparticles at the air/toluene interface. *Chem. Commun.*, pages 1901–1902.
- [6] Ashcroft, Neil W., and Mermin, N. David (1976). *Solid state physics*. Saunders College Publishing, Orlando, FL, first edition.
- [7] Avrutsky, Ivan (2004). Surface plasmons at nanoscale relief gratings between a metal and a dielectric medium with optical gain. *Phys. Rev. B*, 70:155416.
- [8] Babadjanyan, A.J., Margaryan, N.L., and Nerkarayan, Kh.V. (2000). Superfocusing of surface polaritons in the conical structure. *J. Appl. Phys.*, 87(8):3785–3788.
- [9] Bai, Benfeng, Li, Lifeng, and Zeng, Lijiang (2005). Experimental verification of enhanced transmission through two-dimensionally corrugated metallic films without holes. *Opt. Lett.*, 30(18):2360–2362.
- [10] Baida, F.I., and van Labeke, D. (2002). Light transmission by subwavelength annular aperture arrays in metallic films. *Opt. Commun.*, 209:17–22.

- [11] Bakker, Reuben M., Drachev, Vladimir P., Yuan, Hsiao-Kuan, and ShalaeV, Vladimir M. (2004). Enhance transmission in nearfield imaging of layered plasmonic structures. *Opt. Express*, 12(16):3701–3706.
- [12] Barnes, W.L. (1999). Electromagnetic Crystals for Surface Plasmon Polaritons and the Extraction of Light from Emissive Devices. *J. Lightwave Tech.*, 17(11):2170–2182.
- [13] Barnes, W.L., Murray, W.A., Dintinger, J., Devaux, E., and Ebbesen, T.W. (2004). Surface plasmon polaritons and their role in the enhanced transmission of light through periodic arrays of subwavelength holes in a metal film. *Phys. Rev. Lett.*, 92(10): 107401.
- [14] Batchelder, J.S., and Taubenblatt, M.A. (1989). Interferometric detection of forward scattered light from small particles. *Appl. Phys. Lett.*, 55(3):215–217.
- [15] Baumberg, Jeremy J., Keif, Timothy A., Sugawara, Yoshihiro, Cintra, Suzanne, Abdelsalam, Mamdouh E., Bartlett, Phillip N., and Russell, Andrea E. (2005). Angle-resolved surface-enhanced Raman scattering on metallic nanostructured plasmonic crystals. *Nano Letters*, 5(11):2262–2267.
- [16] Berini, P. (1999). Plasmon-polariton modes guided by a metal film of finite width. *Opt. Lett.*, 24(15):1011–1013.
- [17] Berini, P. (2000). Plasmon-polariton waves guided by thin lossy metal films of finite width: Bound modes of symmetric structures. *Phys. Rev. B*, 61(15):10484.
- [18] Berini, P. (2001). Plasmon-polariton waves guided by thin lossy metal films of finite width: Bound modes of asymmetric structures. *Phys. Rev. B*, 63(12): 125417.
- [19] Bethe, H.A. (1944). Theory of diffraction by small holes. *Phys. Rev*, 66(7-8):163–182.
- [20] Bloembergen, N., Chang, R.K., Jha, S.S., and Lee, C.H. (1968). Optical second-harmonic generation in reflection from media with inversion symmetry. *Phys. Rev.*, 174(3):813–822.
- [21] Bohren, Craig F., and Huffman, Donald R. (1983). *Absorption and scattering of light by small particles*. John Wiley & Sons, Inc., New York, NY, first edition.

- [22] Bonod, Nicolas, Enoch, Stefan, Li, Lifeng, Popov, Evgeny, and Nevière, Michel (2003). Resonant optical transmission through thin metallic films with and without holes. *Opt. Express*, 11(5):482–490.
- [23] Borisov, A. G., de Abajo, F. J. García, and Shabanov, S. V. (2005). Role of electromagnetic trapped modes in extraordinary transmission in nanostructured metals. *Phys. Rev. B*, 71:075408.
- [24] Bouhelier, A., Huser, Th., Tamaru, H., Güntherodt, H.-J., Pohl, D. W., Baida, Fadi I., and Labeke, D. Van (2001). Plasmon optics of structured silver films. *Phys. Rev. B*, 63:155404.
- [25] Bouhelier, A., and Wiederrecht, G. P. (2005). Surface plasmon rainbow jets. *Opt. Lett.*, 30(8):884–886.
- [26] Bouwkamp, C. J. (1950a). On Bethe's theory of diffraction by small holes. *Philips Research Reports*, 5(5):321–332.
- [27] Bouwkamp, C. J. (1950b). On the diffraction of electromagnetic waves by small circular disks and holes. *Philips Research Reports*, 5(6):401–422.
- [28] Bouwkamp, C. J. (1954). Diffraction theory. *Rep. Prog. Phys.*, 17:35–100.
- [29] Boyd, Robert W. (2003). *Nonlinear Optics*. Academic Press, San Diego, CA, second edition.
- [30] Boyer, D., Tamarat, P., Maali, A., Lounis, B., and Orrit, M. (2002). Photothermal imaging of nanometer-sized metal particles among scatterers. *Science*, 297:1160–1163.
- [31] Bozhevolnyi, S. I., Volkov, Valentyn S., Devaux, Eloise, Laluet, Jean-Yves, and Ebbesen, Thomas W. (2006). Channel plasmon sub wavelength waveguide components including in-terferometers and ring resonators. *Nature*, 440:508–511.
- [32] Bozhevolnyi, S. I., Beermann, Jonas, and Coello, Victor (2003). Direct observation of localized second-harmonic enhancement in random metal nanostructures. *Phys. Rev. Lett.*, 90(19):197403.
- [33] Bozhevolnyi, S. I., Erland, J., Leosson, K., Skovgaard, P. M. W., and Hvam, J. M. (2001). Waveguiding in surface plasmon polariton band gap structures. *Phys. Rev. Lett.*, 86:3008–3011.
- [34] Bozhevolnyi, Sergey I., Nikolajsen, Thomas, and Leosson, Kristjan (2005a). Integrated power monitor for long-range surface plasmon waveguides. *Opt. Commun.*, 255:51–56.

- [35] Bozhevolnyi, Sergey I., Volkov, Valentyn S., Devaux, Eloise, and Ebbesen, Thomas W. (2005b). Channel plasmon–polariton guiding by subwavelength metal grooves. *Phys. Rev. Lett.*, 95:046802.
- [36] Bravo–Abad, J., García–Vidal, F.J., and Martín–Moreno, L. (2004a). Resonant transmission of light through finite chains of subwavelength holes in a metallic film. *Phys. Rev. Lett.*, 93:227401.
- [37] Bravo–Abad, J., Martín–Moreno, L., and García–Vidal, F.J. (2004b). Transmission properties of a single metallic slit: From the subwavelength regime to the geometrical-optics limit. *Phys. Rev. E*, 69:026601.
- [38] Brongersma, Mark L., Hartman, John W., and Atwater, Harry A. (2000). Electromagnetic energy transfer and switching in nanoparticle chain arrays below the diffraction limit. *Phys. Rev. B*, 62(24):R16356–R16359.
- [39] Burke, J.J., and Stegeman, G.I. (1986). Surface–polariton–like waves guided by thin, lossy metal films. *Phys. Rev. B*, 33(8):5186–5201.
- [40] Cao, Hua, Agrawal, Amit, and Nahata, Ajay (2005). Controlling the transmission resonance lineshape of a single subwavelength aperture. *Opt. Express*, 13(3):763–769.
- [41] Chan, H. B., Marcet, Z., Woo, Kwangje, Tanner, D. B., Carr, D. W., Bower, J. E., Cirelli, R. A., Ferry, E., Klemens, F., Miner, J., Pai, C. S., and Taylor, J. A. (2006). Optical transmission through double–layer metallic subwavelength slit arrays. *Opt. Lett.*, 31(4):516–518.
- [42] Chang, Shih–Hui, Gray, Stephen K., and Schatz, George C. (2005). Surface plasmon generation and light transmission by isolated nanoholes and arrays of nanoholes in thin metal films. *Opt. Express*, 13(8):3150–3165.
- [43] Charbonneau, Robert, Berini, Pierre, Berolo, Ezio, and Lisicka–Shrzek, Ewa (2000). Experimental observation of plasmon–polariton waves supported by a thin metal film of finite width. *Opt. Lett.*, 25(11):844.
- [44] Charbonneau, Robert, Lahoud, Nancy, Mattiussi, Greg, and Berini, Pierre (2005). Demonstration of integrated optics elements based on long–ranging surface plasmon polaritons. *Opt. Express*, 13(3):977–983.
- [45] Chau, K. J., Dice, G. D., and Elezzabi, A. Y. (2005). Coherent plasmonic enhanced terahertz transmission through random metallic media. *Phys. Rev. Lett.*, 94:173904.

- [46] Chen, C. K., Heinz, T. R., Ricard, D., and Shen, Y. R. (1983). C. K. Chen and T. F. Heinz and D. Ricard and Y. R. Shen. *Phys. Rev. B*, 27(4): 1965–1979.
- [47] Chen, S.-J., Chien, F. C., Lin, G. Y., and Lee, K. C. (2004). Enhancement of the resolution of surface plasmon resonance biosensors by control of the size and distribution of nanoparticles. *Opt. Lett.*, 29(12): 1390–1392.
- [48] Citrin, D. S. (2004). Coherent excitation transport in metal–nanoparticle chains. *Nano Letters*, 4(9):1561–1565.
- [49] Citrin, D. S. (2005a). Plasmon–polariton transport in metal–nanoparticle chains embedded in a gain medium. *Opt. Lett.*, 31(1):98–100.
- [50] Citrin, D. S. (2005b). Plasmon polaritons in finite-length metal–nanoparticle chains: The role of chain length unravelled. *Nano Letters*, 5(5):985–989.
- [51] Cognet, L., Tardin, C., Boyer, D., Choquet, D., Tamarat, P., and Lounis, B. (2003). Single metallic nanoparticle imaging for protein detection in cells. *Proceedings of the National Academy of Sciences (USA)*, 100(20): 11350–11355.
- [52] Coutaz, J. L., Neviere, M., Pic, E., and Reinisch, R. (1985). Experimental study of surface-enhanced second-harmonic generation on silver gratings. *Phys. Rev. B*, 32(4):2227–2232.
- [53] Craighead, H. G., and Niklasson, G. A. (1984). Characterization and optical properties of arrays of small gold particles. *Appl. Phys. Lett.*, 44(12):1134–1136.
- [54] Daniels, Jacquitta K., and Chumanov, George (2005). Nanoparticle–mirror sandwich substrates for surface-enhanced Raman scattering. *J. Phys. Chem. B*, 109:17936–17942.
- [55] Dawson, P., de Fornel, E., and Goudonnet, J.-P. (1994). Imaging of surface plasmon propagation and edge interaction using a photon scanning tunneling microscope. *Phys. Rev. Lett.*, 72(18):2927–2930.
- [56] de Abajo, F. J. Garcia (2002). Light transmission through a single cylindrical hole in a metallic film. *Opt. Express*, 10(25): 1475–1484.
- [57] de Abajo, F. J. Garcia and Sáenz, J. J. (2005). Electromagnetic surface modes in structured perfect-conductor surfaces. *Phys. Rev. Lett.*, 95:233901.

- [58] de Abajo, F. J. García, Sáenz, J. J., Campillo, I., and Dolado, J. S. (2006). Site and lattice resonances in metallic hole arrays. *Opt. Express*, 14(1):7–18.
- [59] Degiron, A., and Ebbesen, T. W. (2005). The role of localized surface plasmon modes in the enhanced transmission of periodic subwavelength apertures. *J. Opt. A: Pure Appl. Opt.*, 7:S90–S96.
- [60] Degiron, A., Lezec, H. J., Barnes, W. L., and Ebbesen, T. W. (2002). Effects of hole depth on enhanced light transmission through subwavelength hole arrays. *Appl. Phys. Lett.*, 81(23):4327–4329.
- [61] Degiron, A., Lezec, H. J., Yamamoto, N., and Ebbesen, T. W. (2004). Optical transmission properties of a single subwavelength aperture in a real metal. *Opt. Commun.*, 239:61–66.
- [62] Depine, Ricardo A., and Ledesma, Silvia (2004). Direct visualization of surface-plasmon bandgaps in the diffuse background of metallic gratings. *Opt. Lett.*, 29(19):2216–2218.
- [63] Dereux, A., Devaux, E., Weeber, J. C., Goudonnet, J. R., and Girard, C. (2001). Direct interpretation of near-field optical images. *J. Microscopy*, 202:320–331.
- [64] Devaux, Eloise, Ebbesen, Thomas W., Weeber, Jean-Claude, and Dereux, Alain (2003). Launching and decoupling surface plasmons via microgratings. *Appl. Phys. Lett.*, 83(24):4936–4938.
- [65] Dice, G. D., Mujumdar, S., and Elezzabi, A. Y. (2005). Plasmonically enhanced diffusive and subdiffusive metal nanoparticle-dye random laser. *Appl. Phys. Lett.*, 86:131105.
- [66] Dickson, Robert M., and Lyon, L. Andrew (2000). Unidirectional plasmon propagation in metallic nanowires. *J. Phys. Chem. B*, 104:6095–6098.
- [67] Diez, Antonio, Andrés, Miguel V., and Cruz, José L. (1999). Hybrid surface plasma modes in circular metal-coated tapered fibers. *J. Opt. Soc. Am. A*, 16(12):2978–2982.
- [68] Dittlacher, H., Krenn, J. R., Féridj, N., Lamprecht, B., Schider, G., Salerno, M., Leitner, A., and Aussenegg, R. R. (2002a). Fluorescence imaging of surface plasmon fields. *Appl. Phys. Lett.*, 80(3):404–406.
- [69] Dittlacher, H., Krenn, J. R., Hohenau, A., Leitner, A., and Aussenegg, R. R. (2003). Efficiency of local light-plasmon coupling. *Appl. Phys. Lett.*, 83(18):3665–3667.

- [70] Ditlbacher, H., Krenn, J. R., Schider, G., Leitner, A., and Aussenegg, P. R. (2002b). Two-dimensional optics with surface plasmon polaritons. *Appl. Phys. Lett.*, 81(10):1762–1764.
- [71] Dildbacher, Harald, Hohenau, Andreas, Wagner, Dieter, Kreibig, Uwe, Rogers, Michael, Hofer, Ferdinand, Aussenegg, Franz R., and Krenn, Joachim R. (2005). Silver nanowires as surface plasmon resonators. *Phys. Rev. Lett.*, 95:257403.
- [72] Dragnea, Bogdan, Szarko, Jodi M., Kowarik, Stefan, Weimann, Thomas, Feldmann, Jochen, and Leone, Stephen R. (2003). Near-field surface plasmon excitation on structured gold films. *Nano Letters*, 3(1):3–7.
- [73] Drezet, A., Woehl, J. C., and Huant, S. (2001). Extension of Bethe's diffraction model to conical geometry: Application to near-field optics. *Europhysics Letters*, 54(6):736–740.
- [74] Drude, Paul (1900). Zur Elektronentheorie der Metalle. *Ann. Phys.*, 1:566–613.
- [75] Dulkeith, E., Morteiani, A. C., Niedereichholz, T., Klar, T. A., Feldmann, J., Levi, S. A., van Veggel, F. C. J. M., Neinhoudt, D. N., Moller, M., and Gittins, D. I. (2002). Fluorescence quenching of dye molecules near gold nanoparticles: Radiative and nonradiative effects. *Phys. Rev. Lett.*, 89(20):203002.
- [76] Dulkeith, E., Niedereichholz, T., Klar, T. A., Feldmann, J., von Plessen, G., Gittins, D. I., Mayya, K. S., and Caruso, R. (2004). Plasmon emission in photoexcited gold nanoparticles. *Phys. Rev. B*, 70:205424.
- [77] Eah, Sang-Kee, Jaeger, Heinrich M., Scherer, Norbert R., Wiederrecht, Gary P., and Lin, Xiao-Min (2005). Plasmon scattering from a single gold nanoparticle collected through an optical fiber. *Appl. Phys. Lett.*, 96:031902.
- [78] Ebbesen, T. W., Lezec, H. J., Ghaemi, H. F., Thio, T., and Wolff, P. A. (1998). Extraordinary optical transmission through sub-wavelength hole arrays. *Nature*, 931:667–669.
- [79] Economou, E. N. (1969). Surface plasmons in thin films. *Phys. Rev.*, 182(2):539–554.
- [80] El-Sayed, Ivan H., Huang, Xiaohua, and El-Sayed, Mostafa A. (2005). Surface plasmon resonance scattering and absorption of anti-EGFR antibody conjugated gold nanoparticles in cancer diagnostics: Applications in oral cancer. *Nano Letters*, 5(5):829–834.

- [81] Enoch, Stefan, Quidant, Romain, and Badenes, Goncal (2004). Optical sensing based on plasmon coupling in nanoparticle arrays. *Opt. Express*, 12(15):3422–3427.
- [82] Fang, Nicolas, Lee, Hyesog, Sun, Cheng, and Zhang, Xiang (2005). Sub-diffraction-limited optical imaging with a silver superlens. *Science*, 308:534–537.
- [83] Fano, U. (1941). The theory of anomalous diffraction gratings and of quasi-stationary waves on metallic surfaces (Sommerfeld's waves). *J. Opt. Soc. Am.*, 31:213–222.
- [84] Farrer, Richard A., Butterfield, Francis L., Chen, Vincent W., and Fourkas, John T. (2005). Highly efficient multiphoton-absorption-induced luminescence from gold nanoparticles. *Nano Lett.*, 5(6):1139–1141.
- [85] Félidj, N., Aubard, J., Lévi, G., Krenn, J. R., Schider, G., Leitner, A., and Aussenegg, F. R. (2002). Enhanced substrate-induced coupling in two-dimensional gold nanoparticle arrays. *Phys. Rev. B*, 66:245407.
- [86] Félidj, N., Truong, S. Lau, Aubard, J., Lévi, G., Krenn, J. R., Hohenau, A., Leitner, A., and Aussenegg, F. R. (2004). Gold particle interaction in regular arrays probed by surface enhanced Raman scattering. *J. Chem. Phys.*, 120(15):7141–7146.
- [87] Ganeev, R. A., Baba, M., Ryasnyansky, A. I., Suzuki, M., and Kuroda, H. (2004). Characterization of optical and nonlinear optical properties of silver nanoparticles prepared by laser ablation in various liquids. *Opt. Commun.*, 240:437–448.
- [88] García-Vidal, F. J., Lezec, H. J., Ebbesen, T. W., and Martín-Moreno, L. (2003a). Multiple paths to enhance optical transmission through a single sub wavelength slit. *Phys. Rev. Lett.*, 90(21):213901.
- [89] García-Vidal, F. J., Martín-Moreno, L., Lezec, H. J., and Ebbesen, T. W. (2003b). Focusing light with a single sub wavelength aperture flanked by surface corrugations. *Appl. Phys. Lett.*, 83(22):4500–4502.
- [90] García-Vidal, F. J., Martín-Moreno, L., and Pendry, J. B. (2005a). Surfaces with holes in them: new plasmonic metamaterials. *J. Opt. A: Pure Appl. Opt.*, 7:S97–S101.
- [91] García-Vidal, F. J., Moreno, Esteban, Porto, J. A., and Martín-Moreno, L. (2005b). Transmission of light through a single rectangular hole. *Phys. Rev. Lett.*, 95:103901.

- [92] García-Vidal, F. J., and Pendry, J. B. (1996). Collective theory for surface enhanced Raman scattering. *Phys. Rev. Lett.*, 77(6):1163–1166.
- [93] Gersten, Joel and Nitzan, Abraham (1980). Electromagnetic theory of enhanced Raman scattering by molecules adsorbed on rough surfaces. *J. Chem. Phys.*, 73(7):3023–3037.
- [94] Ghaemi, H. F., Thio, Tineke, Grupp, D. E., Ebbesen, T. W., and Lezec, H. J. (1998). Surface plasmon enhance optical transmission through subwavelength holes. *Phys. Rev. B*, 58(11):6779–6782.
- [95] Giannattasio, Armando and Barnes, William L. (2005). Direct observation of surface plasmon–polariton dispersion. *Opt. Express*, 13(2):428–434.
Giannattasio, Armando, Hooper, Ian R., and Barnes, William L. (2004). Transmission of light through thin silver films via surface plasmon–polaritons. *Opt. Express*, 12(24):5881–5886.
- [96] Girard, Christian and Quidant, Romain (2004). Near–field optical transmittance of metal particle chain waveguides. *Opt Express*, 12(25):6141–6146.
- [97] Gómez-Rivas, J., Kuttge, M., Bolivar, P. Haring, Kurz, H., and Sánchez-Gill, J. A. (2004). Propagation of surface plasmon polaritons on semiconductor gratings. *Phys. Rev. Lett.*, 93:256804.
- [98] Gómez-Rivas, J., Kuttge, M., Kurz, H., Bolivar, P. Haring, and Sánchez-Gill, J. A. (2006). Lowfrequency active surface plasmon optics on semiconductors. *Appl. Phys. Lett.*, 88:082106.
- [99] Gordon, Reuven and Brolo, Alexandre G. (2005). Increased cut–off wavelength for a subwave–length hole in a real metal. *Opt. Express*, 13(6):1933–1938.
- [100] Goubau, Georg (1950). Surface waves and their application to transmission lines. *J. Appl. Phys.*, 21:1119–1128.
Grand, J., de la Chapelle, M. Lamy, Bijeon, J.-L., Adam, P.-M., and Royer, P. (2005). Role of localized surface plasmons in surface–enhanced Raman scattering of shape–controlled metallic particles in regular arrays. *Phys. Rev. B*, 72:033407.
- [101] Grigorenko, A. N., Geim, A. K., Gleeson, H. R., Zhang, Y., Firsov, A. A., Khrushchev, I. Y., and Petrovic, J. (2005). Nanofabricated media with negative permeability at visible frequencies. *Nature*, 438:335–338.
- [102] Grupp, Daniel E., Lezec, Henri J., Thio, Tineke, and Ebbesen, Thomas W. (1999). Beyond the Bethe limit: Tunable enhanced light

- transmission through a single sub-wavelength aperture. *Advanced Materials*, 11(10):860–862.
- [103] Haes, Amanda J., Hall, W. Paige, Chang, Lei, Klein, William L., and van Dyne, Richard P. (2004). A localized surface plasmon resonance biosensor: First steps toward an assay for Alzheimer's disease. *Nano Letters*, 4(6): 1029–1034.
- [104] Hartschuh, Achim, Sánchez, Erik J., Xie, X. Sunney, and Novotny, Lukas (2003). High-resolution near-field Raman microscopy of single-walled carbon nanotubes. *Phys. Rev. Lett.*, 90(9):095503.
- [105] Haus, Hermann A. (1984). *Waves and Fields in Optoelectronics*. Prentice-Hall, Englewood Cliffs, New Jersey 07632, first edition.
- Hayazawa, Norihiko, Saito, Yuika, and Kawata, Satoshi (2004). Detection and characterization of longitudinal field for tip-enhanced Raman spectroscopy. *Appl. Phys. Lett.*, 85(25):6239–6241.
- [106] Haynes, Christy L., McFarland, Adam D., Zhao, LinLin, Duynes, Richard P. Van, Schatz, George C., Gunnarsson, Linda, Prikulis, Juris, Kasemo, Bengt, and Kail, Mikael (2003). Nanoparticle optics: The importance of radiative dipole coupling in two-dimensional nanoparticle arrays. *J. Phys. Chem. B*, 107:7337–7342.
- [107] Hecht, B., Bielefeld, H., Novotny, L., Inoué, Y., and Pohl, D. W. (1996). Local excitation, scattering, and interference of surface plasmons. *Phys. Rev. Lett.*, 77(9): 1889–1892.
- [108] Heilweil, E. J., and Hochstrasser, R. M. (1985). Nonlinear spectroscopy and picosecond transient grating study of colloidal gold. *J. Chem. Phys.*, 82(9):4762–1770.
- [109] Hibbins, Alastair P., Evans, Benjamin R., and Sambles, J. Roy (2005). Experimental verification of designer surface plasmons. *Science*, 308:670–672.
- [110] Hibbins, Alastair P., Lockyear, Matthew J., Hooper, Ian R., and Sambles, J. Roy (2006). Waveguide arrays as plasmonic metamaterials: transmission below cutoff. *Phys. Rev. Lett.*, 96:073904.
- [111] Hicks, Erin M., Zou, Shengli, Schatz, George C., Spears, Kenneth G., Duynes, Richard P. Van, Gunnarsson, Linda, Rindzevicius, Tomas, Kasemo, Bengt, and Kail, Mikael (2005). Controlling plasmon line shapes through diffractive coupling in linear arrays of cylindrical nanoparticles fabricated by electron beam lithography. *Nano Lett.*, 5(6): 1065–1070.

- [112] Hillenbrand, R., Taubner, T., and Keilmann, R. (2002). Phonon-enhanced light-matter interaction at the nanometre scale. *Nature*, 418:159–162.
- Hinds, E. A. (1994). *Perturbative cavity quantum electrodynamics*, pages 1–56. Academic Press, Boston.
- [113] Hirsch, L. R., Stafford, R. J., Bankson, J. A., Sershen, S. R., Rivera, B., Price, R. E., Hazle, J. D., Halas, N. J., and West, J. L. (2003). Nanoshell-mediated near-infrared thermal therapy of tumors under magnetic resonance guiding. *Proc. Nat. Acad. Sci.*, 100(23):13549–13554.
- [114] Hochberg, Michael, Baehr-Jones, Tom, Walker, Chris, and Scherer, Axel (1985). Integrated plasmon and dielectric waveguides. *Opt. Express*, 12(22):5481–5486.
- [115] Hohenau, A., Krenn, J. R., Schider, G., Ditlbacher, H., Leitner, A., Aussenegg, F. R., and Schaich, W. L. (2005a). Optical near-field of multipolar plasmons of rod-shaped gold nano-particles. *Europhys. Lett.*, 69(4):538–543.
- [116] Hohenau, Andreas, Krenn, Joachim R., Stepanov, Andrey L., Drezet, Aurelien, Ditlbacher, Harald, Steinberger, Bernhard, Leitner, Alfred, and Aussenegg, Franz R. (2005b). Dielectric optical elements for surface plasmons. *Opt. Lett.*, 30(8):893–895.
- [117] Homola, Jiri, Slavik, Radan, and Ctyroky, Jiri (1997). Interaction between fiber modes and surface plasmon waves: spectral properties. *Opt. Lett.*, 22(18): 1403–1405.
- [118] Homola, Jiri, Yee, Sinclair S., and Gauglitz, Gunter (1999). Surface plasmon resonance sensors: review. *Sensors and Actuators B*, 54:3–15.
- [119] Hooper, I. R., and Sambles, J. R. (2002). Dispersion of surface plasmon polaritons on short-pitch metal gratings. *Phys. Rev. B*, 65:165432.
- [120] Hooper, I. R., and Sambles, J. R. (2004a). Coupled surface plasmon polaritons on thin metal slabs corrugated on both surfaces. *Phys. Rev. B*, 70:045421.
- [121] Hooper, I. R., and Sambles, J. R. (2004b). Differential ellipsometric surface plasmon resonance sensors with liquid crystal polarization modulators. *Appl. Phys. Lett.*, 85(15):3017–1019.
- [122] Hövel, H., Fritz, S., Hilger, A., Kreibig, U., and Vollmer, M. (1993). Width of cluster plasmon resonances: Bulk dielectric functions and chemical interface damping. *Phys. Rev. B*, 48(24):18178–18188.

- [123] Huber, A., Ocelic, N., Kazantsev, D., and Hillenbrand, R. (2005). Near-field imaging of mid-infrared surface phonon polariton propagation. *Appl. Phys. Lett.*, 87:081103.
- [124] Illinskii, Yu. A., and Keldysh, L. V. (1994). *Electromagnetic response of material media*. Plenum Press, New York, NY, first edition. Imura, Kohei, Nagahara, Tetsuhiko, and Okamoto, Hiromi (2005). Near-field optical imaging of plasmon modes in gold nanorods. *J. Chem. Phys.*, 122:154701.
- [125] Jackson, John D. (1999). *Classical Electrodynamics*. John Wiley & Sons, Inc., New York, NY, 3rd edition.
- [126] Jeon, Tae-In and Grischkowsky, D. (2006). THz Zenneck surface wave (THz surface plasmon) propagation on a metal sheet. *Appl. Phys. Lett.*, 88:061113.
- [127] Jeon, Tae-In, Zhang, Jiangquan, and Grischkowsky, D. (2005). THz Sommerfeld wave propagation on a single metal wire. *Appl. Phys. Lett.*, 86:161904.
- [128] Jette-Charbonneau, Stephanie, Charbonneau, Robert, Lahoud, Nancy, Mattiussi, Greg, and Berrini, Pierre (2005). Demonstration of Bragg gratings based on long-ranging surface plasmon polariton waveguides. *Opt. Express*, 13(12):4674-4682.
- [129] Johannsson, Peter, Xu, Hongxing, and Kail, Mikael (2005). Surface-enhanced Raman scattering and fluorescence near metal nanoparticles. *Phys. Rev. B*, 72:035427.
- [130] Johnson, P. B., and Christy, R. W. (1972). Optical constants of the noble metals. *Phys. Rev. B*, 6(12):4370-4379.
- Kashiwa, Tatsuya and Fukai, Ichiro (1990). A treatment by the FD-TD method of the dispersive characteristics associated with electronic polarization. *Microwave and Optical Technology Letters*, 3(6):203-205.
- [131] Kerker, Milton, Wang, Dau-Sing, and Chew, H. (1980). Surface enhanced Raman scattering (SERS) by molecules adsorbed at spherical particles: errata. *Appl. Opt.*, 19(24):4159-4147.
- [132] Kim, Yoon-Chang, Peng, Wei, Banerji, Soame, and Booksh, Karl S. (2005). Tapered fiber optic surface plasmon resonance sensor for analyses of vapor and liquid phases. *Opt. Lett.*, 30(17):2218-2220.
- [133] Kittel, Charles (1996). *Introduction to Solid State Physics*. John Wiley & Sons, Inc., New York, NY, seventh edition edition.

- [134] Klar, T., Perner, M., Grosse, S., von Plessen, G., Spirkl, W., and Feldmann, J. (1998). Surface-plasmon resonances in single metallic nanoparticles. *Phys. Rev. Lett.*, 80(19):4249–4252.
- [135] Kneipp, K., Kneipp, H., Itzkan, I., Dasari, R. R., and Feld, M. S. (2002). Surface enhanced Raman scattering and biophysics. *J. Phys. Cond. Mat.*, 14:R597–R624.
- [136] Kneipp, K., Wang, Y., Kneipp, H., Perelman, L. T., Itzkan, I., Dasari, R. R., and Feld, M. S. (1997). Single molecule detection using surface-enhanced Raman scattering (SERS). *Phys. Rev. Lett.*, 78(9):1667.
- [137] Kokkinakis, Th., and Alexopoulos, K. (1972). Observation of radiative decay of surface plasmons in small silver particles. *Phys. Rev. Lett.*, 28(25):1632–1634.
- [138] Kreibig, U., and Vollmer, M. (1995). Optical properties of metal clusters. Springer, Berlin. Krenn, J. R., Dereux, A., Weeber, J. C., Bourillot, E., Lacroute, Y., Goudonnet, J. P., Schider, G., Gotschy, W., Leitner, A., Aussenegg, F. R., and Girard, C. (1999). Squeezing the optical near-field zone by plasmon coupling of metallic nanoparticles. *Phys. Rev. Lett.*, 82(12):2590–2593.
- [139] Krenn, J. R., Lamprecht, B., Ditlbacher, H., Schider, G., Salerno, M., Leitner, A., and Aussenegg, F. R. (2002). Non-diffraction-limited light transport by gold nanowires. *Europhys. Lett.*, 60(5):663–669.
- [140] Krenn, J. R., Salerno, M., Felidj, N., Lamprecht, B., Schider, G., Leitner, A., Aussenegg, F. R., Weeber, J. C., Dereux, A., and Goudonnet, J. P. (2001). Light field propagation by metal micro- and nanostructures. *J. Microscopy*, 202:122–128.
- [141] Krenn, J. R., Schider, G., Rechenberger, W., Lamprecht, B., Leitner, A., Aussenegg, F. R., and Weeber, J. C. (2000). Design of multipolar plasmon excitations in silver nanoparticles. *Appl. Phys. Lett.*, 77(21):3379–3381.
- [142] Kretschmann, E. (1971). Die Bestimmung optischer Konstanten von Metallen durch Anregung von Oberflächenplasmaschwingungen. *Z. Physik*, 241:313–324.
- [143] Kretschmann, E., and Raether, H. (1968). Radiative decay of non-radiative surface plasmons excited by light. *Z. Naturforschung*, 23A:2135–2136.
- [144] Kuwata, Hitoshi, Tamaru, Hiroharu, Esumi, Kunio, and Miyano, Kenjiro (2003). Resonant light scattering from metal nanoparticles: Practical analysis beyond Rayleigh approximation. *Appl. Phys. Lett.*, 83(22):4625–4627.

- [145] Lamprecht, B., Krenn, J.R., Leitner, A., and Aussenegg, F.R. (1999). Resonant and off-resonant light-driven plasmons in metal nanoparticles studied by femtosecond-resolution third-harmonic generation. *Phys. Rev. Lett.*, 83(21):4421–1424.
- [146] Lamprecht, B., Krenn, J.R., Schider, G., Ditlbacher, H., Salerno, M., Félidj, N., Leitner, A., Aussenegg, F.R., and Weeber, J.C. (2001). Surface plasmon propagation in microscale metal stripes. *Appl. Phys. Lett.*, 79(1):51–53.
- [147] Lamprecht, B., Schider, G., Ditlbacher, R. T. Lechner H., Krenn, J.R., Leitner, A., Aussenegg, F.R., and Weeber, J. C. (2000). Metal nanoparticle gratings: Influence of dipolar particle interaction on the plasmon resonance. *Phys. Rev. Lett.*, 84(20):4721–4724.
- [148] Larkin, Ivan A., Stockman, Mark I., Achermann, Marc, and Klimov, Victor I. (2004). Dipolar emitters at nanoscale proximity of metal surfaces: Giant enhancement of relaxation in microscopic theory. *Phys. Rev. B*, 69:121403(R).
- [149] Laurent, G., Félidj, N., Traong, S. Lau, Aubard, J., Levi, G., Krenn, J. R., Hohenau, A., Leitner, A., and Aussenegg, F.R. (2005a). Imaging surface plasmon of gold nanoparticle arrays by far-field Raman scattering. *Nano Letters*, 5(2):253–258.
- [150] Laurent, G., Félidj, N., Traong, S. Lau, Aubard, J., Levi, G., Krenn, J. R., Hohenau, A., Leitner, G., Schider, A., and Aussenegg, F.R. (2005b). Evidence of multipolar excitations in surface enhanced Raman scattering. *Phys. Rev. B*, 71:045430.
- [151] Lawandy, L.M. (2004). Localized surface plasmon singularities in amplifying media. *Appl. Phys. Lett.*, 85(21):5040–5042.
- [152] Leosson, K., Nikolajsen, T., Boltasseva, A., and Bozhevolnyi, S.I. (2006). Longrange surface plasmon polariton nanowire waveguides for device applications. *Opt. Express*, 14(1):314–319.
- [153] Lezec, H.J., Degiron, A., Devaux, E., Linke, R.A., Martin-Moreno, L., Garcia-Vidal, F.J., and Ebbesen, T.W. (2002). Beaming light from a subwavelength aperture. *Science*, 297:820–822.
- [154] Li, Kuiru, Stockman, Martin I., and Bergman, David J. (2003). Self-similar chain of metal nanospheres as an efficient nanolens. *Phys. Rev. Lett.*, 91(22):227402.
- [155] Liao, P.F., and Wokaun, A. (1982). Lightning rod effect in surface enhanced Raman scattering. *J. Chem. Phys.*, 76(1):751–752.

- [156] Lin, Haohao, Mock, Jack, Smith, David, Gao, Ting, and Sailor, Michael J. (2004). Surface-enhanced Raman scattering from silver-plated porous silicon. *J. Phys. Chem. B*, 108:11654–11659.
- [157] Link, Stephan and El-Sayed, Mostafa A. (2000). Shape and size dependence of radiative, non-radiative and photothermal properties of gold nanocrystals. *Int. Reviews in Physical Chemistry*, 19(3):409–453.
- [158] Lippitz, Markus, van Dijk, Meindert A., and Orrit, Michel (2005). Third-harmonic generation from single gold nanoparticles. *Nano Lett.*, 5(4):799–802.
- [159] Liu, Hongwen, Ie, Yataka, Yoshinobu, Tasuo, Aso, Yoshio, Iwasaki, Hiroshi, and Nishitani, Ryusuke (2006). Plasmon-enhanced molecular fluorescence from an organic film in a tunnel junction. *Appl. Phys. Lett.*, 88:061901.
- [160] Liu, Zahowei, Steele, Jennifer M., Srituravanich, Werayut, Pikus, Yuri, Sun, Cheng, and Zhang, Xiang (2005). Focusing surface plasmons with a plasmonic lens. *Nano Letters*, 5(9):1726–1729.
- [161] Loudon, R. (1970). The propagation of electromagnetic energy through an absorbing dielectric. *J. Phys. A*, 3:233–245.
- [162] Lu, H. Peter (2005). Site-specific Raman spectroscopy and chemical dynamics of nanoscale interstitial systems. *J. Phys.: Condens. Matter*, 17:R333–R355.
- [163] Lu, Yu, Liu, Gang L., Kim, Jaeyoun, Mejia, Yara X., and Lee, Luke P. (2005). Nanophotonic crescent moon structures with sharp edge for ultrasensitive biomolecular detection by local electromagnetic field enhancement effect. *Nano Letters*, 5(1):119–124.
- [164] Luo, Xiangang and Ishihara, Teruya (2004). Surface plasmon resonant interference nanolithography technique. *Appl. Phys. Lett.*, 84(23):4780–4782.
- [165] Maier, Stefan A. (2006a). Gain-assisted propagation of electromagnetic energy in subwave-length surface plasmon polariton gap waveguides. *Opt. Commun.*, 258:295–299.
- [166] Maier, Stefan A. (2006b). Plasmonic field enhancement and SERS in the effective mode volume picture. *Opt. Express*, 14(5):1957–1964.
- [167] Maier, Stefan A., Barclay, Paul E., Johnson, Thomas J., Friedman, Michelle D., and Painter, Oskar (2004). Low-loss fiber accessible plasmon

- waveguides for planar energy guiding and sensing. *Appl. Phys. Lett.*, 84(20):3990–3992.
- [168] Maier, Stefan A., Brongersma, Mark L., Kik, Pieter G., and Atwater, Harry A. (2002a). Observation of near-field coupling in metal nanoparticle chains using far-field polarization spectroscopy. *Phys. Rev. B*, 65:193408.
- [169] Maier, Stefan A., Brongersma, Mark L., Kik, Pieter G., Meltzer, Sheffer, Requicha, Ari A. G., and Atwater, Harry A. (2001). Plasmonics – a route to nanoscale optical devices. *Adv. Mat.*, 13(19):1501.
- [170] Maier, Stefan A., Friedman, Michelle D., Barclay, Paul E., and Painter, Oskar (2005). Experimental demonstration of fiber-accessible metal nanoparticle plasmon waveguides for planar energy guiding and sensing. *Appl. Phys. Lett.*, 86:071103.
- [171] Maier, Stefan A., Kik, Pieter G., and Atwater, Harry A. (2002b). Observation of coupled plasmonpolariton modes in Au nanoparticle chain waveguides of different lengths: Estimation of waveguide loss. *Appl. Phys. Lett.*, 81:1714–1716.
- [172] Maier, Stefan A., Kik, Pieter G., and Atwater, Harry A. (2003a). Optical pulse propagation in metal nanoparticle chain waveguides. *Phys. Rev. B*, 67:205402.
- [173] Maier, Stefan A., Kik, Pieter G., Atwater, Harry A., Meltzer, Sheffer, Harel, Elad, Koel, Brace E., and Requicha, Ari A. G. (2003b). Local detection of electromagnetic energy transport below the diffraction limit in metal nanoparticle plasmon waveguides. *Nat. Mat.*, 2(4):229–232.
- [174] Marder, Michael P. (2000). *Condensed Matter Physics*. John Wiley & Sons, Inc., New York, NY.
- [175] Markel, V. A., Shalaev, V. M., Zhang, P., Huynh, W., Tay, L., Haslett, T. L., and Moskovits, M. (1999). Near-field optical spectroscopy of individual surface-plasmon modes in colloid clusters. *Phys. Rev. B*, 59(16):10903–10909.
- [176] Marquart, Carsten, Bozhevolnyi, Sergey I., and Leosson, Kristjan (2005). Near-field imaging of surface plasmon-polariton guiding in band gap structures at telecom wavelengths. *Opt. Express*, 13(9):3303–3309.
- [177] Marquier, R., Greffet, J.-J., Collin, S., Pardo, R., and Pelouard, J. L. (2005). Resonant transmission through a metallic films due to coupled modes. *Opt. Express*, 13(1):70–76.

- [178] Marti, O., Bielefeld, H., Hecht, B., Herminghaus, S., Leiderer, P., and Mlynek, J. (1993). Near-field optical measurement of the surface plasmon field. *Opt. Commun.*, 96(4-6):225-228.
- [179] Martín-Moreno, L., García-Vidal, R. J., Lezec, H. J., Degiron, A., and Ebbesen, T. W. (2003). Theory of highly directional emission from a single subwavelength aperture surrounded by surface corrugations. *Phys. Rev. Lett.*, 90(16):167401.
- [180] Matsui, Tatsunosuke, Vardeny, Z. Vally, Agrawal, Amit, Nahata, Ajay, and Menon, Reghu (2006). Resonantly-enhanced transmission through a periodic array of subwavelength apertures in heavily-doped conducting polymer films. *Appl. Phys. Lett.*, 88:071101.
- [181] Meier, M., and Wokaun, A. (1983). Enhanced fields on large metal particles: dynamic depolarization. *Opt. Lett.*, 8(11):581-583.
- [182] Melville, David O. S., and Blaikie, Richard J. (2005). Super-resolution imaging through a planar silver layer. *Opt. Express*, 13(6):2127-2134.
- [183] Melville, David O. S., and Blaikie, Richard J. (2006). Super-resolution imaging through a planar silver layer. *J. Opt. Soc. Am. B*, 23(3):461-467.
- [184] Mie, Gustav (1908). Beitrage zur Optik triiber Medien, speaiell kolloidaler Metallbsungen. *Ann. Phys.*, 25:377.
- [185] Mikhailovsky, A. A., Petruska, M. A., Li, Kuiru, Stockman, M. I., and Klimov, V. I. (2004). Phase-sensitive spectroscopy of surface plasmons in individual metal nanostructures. *Phys. Rev. Lett.*, 93:085401.
- [186] Mikhailovsky, A. A., Petruska, M. A., Stockman, M. I., and Klimov, V. I. (2003). Broadband near-field interference spectroscopy of metal nanoparticles using a femtosecond white-light continuum. *Opt. Lett.*, 28(18):1686-1688.
- [187] Milner, R. G., and Richards, D. (2001). The role of tip plasmons in near-field Raman microscopy. *J. Microscopy*, 202:66-71.
- [188] Mitsui, Keita, Handa, Yoichiro, and Kajikawa, Kotaro (2004). Optical fiber affinity biosensor based on localized surface plasmon resonance. *Appl. Phys. Lett.*, 85(18):4231-4233.
- [189] Mock, J. J., Barbic, M., Smith, D. R., Schultz, D. A., and Schultz, S. (2002a). Shape effects in plasmon resonance of individual colloidal silver nanoparticles. *J. Chem. Phys.*, 116(15):6755-6759.

- [190] Mock, J. J., Oldenburg, S. J., Smith, D. R., Schultz, D. A., and Schultz, S. (2002b). Composite plasmon resonant nanowires. *Nano Letters*, 2(5):465–469.
- [191] Mock, Jack J., Smith, David R., and Schultz, Sheldon (2003). Local refractive index dependence of plasmon resonance spectra from individual nanoparticles. *Nano Letters*, 3(4):485–491.
- [192] Monzon–Hernandez, David, Villatoro, Joel, Talavera, Dimas, and Luna–Moreno, Donato (2004). Optical–fiber surface–plasmon resonance sensor with multiple resonance peaks. *Appl. Opt.*, 43(6):1216–1220.
- [193] Mooradian, A. (1969). Photoluminescence of metals. *Phys. Rev. Lett.*, 22(5): 185–187.
- [194] Moreno, Estaban, Fernández–Domínguez, A. I., Cirac, J. Ignacia, Garía–Vidal, F. J., and Martín–Moreno, L. (2005). Resonant transmission of cold atoms through subwavelength apertures. *Phys. Rev. Lett.*, 95:170406.
- [195] Moser, H. O., Casse, B. D. F., Wilhelmi, O., and Shaw, B. T. (2005). Terahertz response of a microfabricated rod–split–ring–resonator electromagnetic metamaterial. *Phys. Rev. Lett.*, 94:063901.
- [196] Moskovits, Martin (1985). Surface–enhanced spectroscopy. *Reviews of Modern Physics*, 57(3): 783–826.
- [197] Nenninger, G. G., Tobiska, P., Homola, J., and Yee, S. S. (2001). Long–range surface plasmons for high–resolution surface plasmon resonance sensors. *Sensors and Actuators B*, 74:145–151.
- [198] Nezhad, Maziar P., Tetz, Kevin, and Fainman, Yeshaiahu (2004). Gain assisted propagation of surface plasmon polaritons on planar metallic waveguides. *Opt. Express*, 12(17):4072.
- [199] Nie, S. M., and Emery, S. R. (1997). Probing single molecules and single nanoparticles by surface–enhanced Raman scattering. *Science*, 275(5303):1102.
- [200] Nienhuys, Han–Kwang and Sundstrom, Villy (2005). Influence of plasmons on terahertz conductivity measurements. *Appl. Phys. Lett.*, 87:012101.
- [201] Nikolajsen, Thomas, Leosson, Kristjan, and Bozhevolnyi, Sergey I. (2004a). Surface plasmon polariton based modulators and switches operating at telecom wavelengths. *Appl. Phys. Lett.*, 85(24):5833–5835.

- [202] Nikolajsen, Thomas, Leosson, Kristjan, and Bozhevolnyi, Sergey I. (2004b). Surface plasmon polariton based modulators and switches operating at telecom wavelengths. *Appl. Phys. Lett.*, 85(24):5833–5835.
- [203] Nomura, Wataru, Ohtsu, Motoichi, and Yatsui, Takashi (2005). Nanodot coupler with a surface plasmon polariton condenser for optical far/near-field conversion. *Appl. Phys. Lett.*, 86:181108.
- [204] Nordlander, P., Oubre, C., Prodan, E., Li, K., and Stockman, M. I. (2004). Plasmon hybridization in nanoparticle dimers. *Nano Lett.*, 4(5):899–903.
- [205] Novikov, I. V., and Maradudin, A. A. (2002). Channel polaritons. *Phys. Rev. B*, 66:035403.
- [206] Ocelic, N., and Flillenbrand, R. (2004). Subwavelength-scale tailoring of surface phonon polaritons by focused ion-beam implantation. *Nat. Mat.*, 3:606–609.
- [207] Offerhaus, H. L., van den Bergen, B., Escalante, M., Segerink, F. B., Korterik, J. P., and van Hulst, N. F. (2005). Creating focus plasmons by noncollinear phasematching on functional gratings. *Nano Lett.*, 5(11):2144–2148.
- [208] Olkkonen, Juuso, Kataja, Kari, and Howe, Dennis G. (2005). Light transmission through a high index dielectric-filled sub-wavelength hole in a metal film. *Nature*, 432:376–379.
- [209] Ordal, M. A., Long, L. L., Bell, R. J., Bell, R. R., Alexander R. W., and Ward, C. A. (1983). Optical properties of the metals Al, Co, Cu, Au, Fe, Pb, Ni, Pd, Pt, Ag, Ti, and W in the infrared and far infrared. *Appl. Opt.*, 22(7):1099–1119.
- [210] Otto, A. (1968). Excitation of nonradiative surface plasma waves in silver by the method of frustrated total reflection. *Z. Physik*, 216:398–410.
- [211] Oubre, Chris and Nordlander, Peter (2004). Optical properties of metallodielectric nanostructures calculated using the finite difference time domain method. *J. Phys. Chem. B*, 108:17740–17747.
- [212] Park, Sung Yong and Stroud, David (2004). Surface-plasmon dispersion relations in chains of metallic nanoparticles: An exact quasistatic solution. *Phys. Rev. B*, 69:125418.
- [213] Park, Suntak, Lee, Gwansu, Song, Seok Ho, Oh, Cha Hwan, and Kim, Phill Soo (2003). Resonant coupling of surface plasmons to radiation modes by use of dielectric gratings. *Opt. Lett.*, 28(20):1870–1872.

- [214] Passian, A., Lereu, A. L., Wig, A., Meriaudeau, E., Thundat, T., and Ferrell, T. L. (2005). Imaging standing surface plasmons by photon tunneling. *Phys. Rev. B*, 71:165418.
- [215] Passian, A., Wig, A., Lereu, A. L., Meriaudeau, E., Thundat, T., and Ferrell, T. L. (2004). Photon tunneling via surface plasmon coupling. *Appl. Phys. Lett.*, 85(16):3420–3422.
- [216] Pendry, J. B. (2000). Negative refraction makes a perfect lens. *Phys. Rev. Lett.*, 85(18):3966–3969.
- [217] Pendry, J. B., Holden, A. J., Robbins, D. J., and Stewart, W. J. (1999). Magnetism from conductors and enhanced nonlinear phenomena. *IEEE Trans. Microwave Theory Tech.*, 47(11):2075–2084.
- [218] Pendry, J. B., Holden, A. J., Stewart, W. J., and Youngs, I. (1996). Extremely low frequency plasmons in metallic mesostructures. *Phys. Rev. Lett.*, 76(25):4773–4776.
- [219] Pendry, J. B., Martín-Moreno, L., and García-Vidal, F. J. (2004). Mimicking surface plasmons with structured surfaces. *Science*, 305:847–848.
- [220] Pettinger, Bruno, Ren, Bin, Picardi, Gennaro, Schuster, Rolf, and Ertl, Gerhard (2004). Nano-scale probing of adsorbed species by η p-enhanced Raman spectroscopy. *Phys. Rev. Lett.*, 92(9): 096101.
- [221] Pettit, R. B., Silcox, J., and Vincent, R. (1975). Measurement of surface-plasmon dispersion in oxidized aluminum films. *Phys. Rev. B*, 11(8):3116–3123.
- [222] Pile, D. F. P., and Gramotnev, D. K. (2004). Channel plasmon-polariton in a triangular groove on a metal surface. *Opt. Lett.*, 29(10):1069.
- [223] Pile, D. F. P., Ogawa, T., Gramotnev, D. K., Matsuzaki, Y., Vernon, K. C., Yamaguchi, K., Okamoto, T., Haraguchi, M., and Fukui, M. (2005). Two-dimensionally localized modes of a nanoscale gap plasmon waveguide. *Appl. Phys. Lett.*, 87:261114.
- [224] Porto, J. A., García-Vidal, F. J., and Pendry, J. B. (1999). Transmission resonances on metallic gratings with very narrow slits. *Phys. Rev. Lett.*, 83(14):2845–2848.
- [225] Porto, J. A., Martín-Moreno, L., and García-Vidal, F. J. (2004). Optical bistability in subwave-length slit apertures containing nonlinear media. *Phys. Rev. B*, 70:081402(R).

- [226] Powell, C.J., and Swan, J.B. (1960). Effect of oxidation on the characteristic loss spectra of aluminum and magnesium. *Phys. Rev.*, 118(3):640–643.
- [227] Prade, B., and Vinet, J.Y. (1994). Guided optical waves in fibers with negative dielectric constant. *J. Lightwave Tech.*, 12(1):6–18.
- [228] Prade, B., Vinet, J.Y., and Mysyrowicz, A. (1991). Guided optical waves in planar heterostructures with negative dielectric constant. *Phys. Rev. B*, 44(24): 13556–13572.
- [229] Prikulis, Juris, Hanarp, Per, Olofsson, Linda, Sutherland, Duncan, and Käll, Mikael (2004). Optical spectroscopy of nanometric holes in thin gold films. *Nano Lett.*, 4(6): 1003–1007.
- [230] Prodan, E., and Nordlander, P. (2003). Structural tunability of the plasmon resonances in metallic nanoshells. *Nano Lett.*, 3(4):543–547.
- [231] Prodan, E., Nordlander, P., and Halas, N.J. (2003a). Electronic structure and optical properties of gold nanoshells. *Nano Lett.*, 3(10):1411–1415.
- [232] Prodan, E., Radloff, C., Halas, N.J., and Nordlander, P. (2003b). A hybridization model for the plasmon response of complex nanostructures. *Science*, 203:419–422.
- [233] Qiu, Min (2005). Photonic band structure for surface waves on structured metal surfaces. *Opt. Express*, 13(19):7583–7588.
- [234] Quail, J.C., Rako, J.G., and Simon, H.J. (1983). Longrange surface-plasmon modes in silver and aluminum films. *Opt. Lett.*, 8(7):377–379.
- [235] Quinten, M., Leitner, A., Krenn, J.R., and Aussenegg, F.R. (1998). Electromagnetic energy transport via linear chains of silver nanoparticles. *Opt. Lett.*, 23(17):1331–1333.
- [236] Quinten, Michael and Kreibig, Uwe (1993). Absorption and elastic scattering of light by particle aggregates. *Appl. Opt.*, 32(30):6173–6182.
- [237] Raether, Heinz (1988). *Surface Plasmons*, volume 111 of *Springer-Verlag Tracts in Modern Physics*. Springer-Verlag, New York.
- [238] Raschke, G., Brogl, S., Susha, A.S., Rogach, A.L., Klar, T.A., Feldmann, J., Fieries, B., Pefkov, N., Bein, T., Nichtl, A., and Kurzinger, K. (2004). Gold nanoshells improve single nanoparticle molecular sensors. *Nano Letters*, 4(10):1853–1857.
- [239] Raschke, G., Kowarik, S., Franzl, T., Soennichsen, C., Klar, T.A., and Feldmann, J. (2003). Biomolecular recognition based on single gold nanoparticle light scattering. *Nano Letters*, 3(7):935–938.

- [240] Ren, Bin, Lin, Xu-Feng, Yang, Zhi-Lin, Liu, Guo-Kun, Aroca, Rocardo F., Mao, Bing-Wei, and Tian, Zhong-Qun (2003). Surface-enhanced Raman scattering in the ultraviolet spectral region: UV-SERS on Rhodium and Ruthenium electrodes. *J. Am. Chem. Soc.*, 125:9598–9599.
- [241] Renger, Jan, Grafstrom, Stefan, Eng, Lukas M., and Hillenbrand, Rainer (2005). Resonant light scattering by near-field-induced phonon polaritons. *Phys. Rev. B*, 71:075410.
- [242] Rigneault, Hervé, Capoulade, Jérémie, Dintinger, José, Wenger, Jérôme, Bonod, Nicolas, Popov, Evgeni, Ebbesen, Thomas W., and Lenne, Pierre-François (2005). Enhancement of single-molecule fluorescence detection in sub wavelength apertures. *Phys. Rev. Lett.*, 95:117401.
- [243] Rindzevicius, Tomas, Alaverdyan, Yury, Dahlin, Andreas, Hook, Fredrik, Sutherland, Duncan S., and Kail, Mikael (2005). Plasmonic sensing characteristics of single nanometric holes. *Nano Lett.*, 5(11):2335–2339.
- [244] Ritchie, R. H. (1957). Plasma losses by fast electrons in thin films. *Phys. Rev.*, 106(5):874–881.
- [245] Ritchie, R. H., Arakawa, E. T., Cowan, J. J., and Hamm, R. N. (1968). Surface-plasmon resonance effect in grating diffraction. *Phys. Rev. Lett.*, 21(22):1530–1533.
- [246] Roberts, A. (1987). Electromagnetic theory of diffraction by a circular aperture in a thick, perfectly conducting screen. *J. Opt. Soc. Am. A*, 4(10):1970–1983.
- [247] Rudnick, Joseph and Stern, E. A. (1971). Second-harmonic generation from metal surfaces. *Phys. Rev. B*, 4(12):4274–4290.
- [248] Ruppin, R. (2002). Electromagnetic energy density in a dispersive and absorptive material. *Phys. Lett. A*, 299:309–312.
- [249] Ruppin, R. (2005). Effect of non-locality on nanofocusing of surface plasmon field intensity in a conical tip. *Physics Letters A*, 340:299–302.
- [250] Saleh, Bahaa E. A., and Teich, Malvin Carl (1991). *Fundamentals of Photonics*. John Wiley & Sons, Inc., New York, NY.
- [251] Sarid, Dror (1981). Long-range surface-plasma waves on very thin metal films. *Phys. Rev. Lett.*, 47(26):1927–1930.
- [252] Sarychev, Andrey K., Shvets, Gennady, and Shalaev, Vladimir M. (2006). Magnetic plasmon resonance. *Phys. Rev. E*, 73:036609.

- [253] Sauer, G., Brehm, G., Schneider, S., Graener, H., Seifert, G., Nielsch, K., Choi, J., Goring, P., Gosele, U., Miclea, P., and Wehrspohn, R. B. (2005). In situ surface-enhanced Raman spectroscopy of monodisperse silver nanowire arrays. *J. Appl. Phys.*, 97:024308.
- [254] Sauer, G., Brehm, G., Schneider, S., Graener, H., Seifert, G., Nielsch, K., Choi, J., Goring, P., Gosele, U., Miclea, P., and Wehrspohn, R. B. (2006). Surface-enhanced Raman spectroscopy employing monodisperse nickel nanowire arrays. *Appl. Phys. Lett.*, 88:023106.
- [255] Saxler, J., Rivas, J. Gomez, Janke, C., Pellemans, H. P. M., Bolivar, P. Haring, and Kurz, H. (2004). Time-domain measurements of surface plasmon polaritons in the terahertz frequency range. *Phys. Rev. B*, 69:155427.
- [256] Schouten, H. R., Kuzmin, N., Dubois, G., Visser, T. D., Gbur, G., Alkemade, P. F. A., Blok, H., 't Hooft, G. W., Lenstra, D., and Eliel, E. R. (2005). Plasmon-assisted two-slit transmission: Young's experiment revisited. *Phys. Rev. Lett.*, 94:053901.
- [257] Shalaev, Vladimir M. (2000). *Nonlinear optics of random media*. Springer, Heidelberg, Germany, first edition.
- [258] Shalaev, Vladimir M., Cai, Wenshan, Chettiar, Uday K., Yuan, Hsiao-Kuan, Sarychev, Andrey K., Drachev, Vladimir P., and Kildishev, Alexander V. (2005). Negative index of refraction in optical metamaterials. *Opt. Lett.*, 30(24):3356–3358.
- [259] Shalaev, Vladimir M., Poliokov, E. Y., and Markel, V. A. (1996). Small-particle composites. II. Nonlinear optical properties. *Phys. Rev. B*, 53(5):2437–2449.
- [260] Shelby, R., Smith, D. R., and Schultz, S. (2001). Experimental verification of a negative index of refraction. *Science*, 292:77–79.
- [261] Shi, Xiaolei, Hesselink, Lambertus, and Thornton, Robert L. (2003). Ultrahigh light transmission through a C-shaped nanoaperture. *Opt. Lett.*, 28(15):1320–1322.
- [262] Shin, Hocheol, Catrysse, Peter B., and Fan, Shanhui (2005). Effect of the plasmonic dispersion relation on the transmission properties of subwavelength cylindrical holes. *Phys. Rev. B*, 72:085436.
- [263] Shou, Xiang, Agrawal, Amit, and Nahata, Ajay (2005). Role of metal film thickness on the enhanced transmission properties of a periodic array of subwavelength apertures. *Opt. Express*, 13(24):9834–9840.

- [264] Shubin, V. A., Kim, W., Safonov, V. P., Sarychev, A. K., Armstrong, R. L., and Shalaev, Vladimir M. (1999). Surface-Plasmon-Enhanced Radiation Effects in Confined Photonic Systems. *J. Lightwave Tech.*, 17(11):2183–2190.
- [265] Simon, H. J., Mitchell, D. E., and Watson, J. G. (1974). Optical second-harmonic generation with surface plasmons in silver films. *Phys. Rev. Lett.*, 33(26):1531–1534.
- [266] Sipe, J. E., So, V. C. Y., Fukui, M., and Stegeman, G. I. (1980). Analysis of second-harmonic generation at metal surfaces. *Phys. Rev. B*, 21(10):4389–41402.
- Slavik, Radan, Homola, Jiri, and Ctyroky, Jiri (1999). Single-mode optical fiber surface plasmon resonance sensor. *Sensors and Actuators B*, 74:74–79.
- [267] Smith, D. R., Pendry, J. B., and Wiltshire, M. C. K. (2004). Metamaterials and negative refractive index. *Science*, 305:788–792.
- [268] Smolyaninov, Igor I., Hung, Yu-Ju, and Davis, Christopher C (2005). Surface plasmon dielectric waveguides. *Appl. Phys. Lett.*, 87:241106.
- [269] Sömmerfeld, A. (1899). Über die Fortpflanzung elektrodynamischer Wellen langs eines Drahtes. *Ann. Phys. und Chemie*, 67:233–290.
- [270] Sönnichsen, C., Franzl, T., Wilk, T., von Plessen, G., and Feldmann, J. (2002a). Plasmon resonances in large noble-metal clusters. *New Journal of Physics*, 4:93.1–93.8.
- [271] Sönnichsen, C., Franzl, T., Wilk, T., von Plessen, G., Feldmann, J., Wilson, O., and Mulvaney, P. (2002b). Drastic reduction of plasmon damping in gold nanorods. *Phys. Rev. Lett.*, 88(7):077402.
- [272] Sönnichsen, C., Geier, S., Hecker, N. E., von Plessen, G., Feldmann, J., Ditlbacher, H., Lamprecht, B., Krerm, J. R., Aussenegg, F. R., Chan, V. Z., Spatz, J. P., and Moller, M. (2000). Spectroscopy of single metal nanoparticles using total internal reflection microscopy. *Appl. Phys. Lett.*, 77:2949–2951.
- [273] Sönnichsen, Carsten and Alivisatos, A. Paul (2005). Gold nanorods as novel nonbleaching plasmon-based orientation sensors for polarized single-particle spectroscopy. *Nano Letters*, 5(2):301–304.
- [274] Spillane, S. M., Kippenberg, T. J., and Vahala, K. J. (2002). Ultralow-threshold Raman laser using spherical dielectric microcavity. *Nature*, 415:621–623.

- [275] Srituravanich, Werayut, Fang, Nicholas, Sun, Cheng, Luo, Qi, and Zhang, Xiang (2004). Plasmonic nanolithography. *Nano Lett.*, 4(6):1085–1088.
- [276] Stegeman, G. I., Walhs, R. E., and Maradudin, A. A. (1983). Excitation of surface polaritons by end-fire coupling. *Opt. Lett.*, 8(7):386–388.
- [277] Stern, E. A., and Ferrell, R. A. (1960). Surface plasma oscillations of a degenerate electron gas. *Phys. Rev.*, 120(1):130–136.
- [278] Stockman, Martin I. (2004). Nanofocusing of optical energy in tapered plasmonic waveguides. *Phys. Rev. Lett.*, 93(13):137404.
- [279] Su, K. H., Wei, Q.-H., Zhang, X., Mock, J. J., Smith, D. R., and Schultz, S. (2003). Interparticle coupling effects on plasmon resonances of nanogold particles. *Nano Letters*, 3(8):1087–1090.
- [280] Sundaramurthy, Arvind, Crozier, K. B., Kino, G. S., Fromm, D. R., Schuck, R. J., and Moemer, W. E. (2005). Field enhancement and gap-dependent resonance in a system of two opposing tip-to-tip Au nanotriangles. *Phys. Rev. B*, 72:165409.
- [281] Takahara, J., Yamagishi, S., Taki, H., Morimoto, A., and Kobayashi, T. (1997). Guiding of a one-dimensional optical beam with nanometer diameter. *22(7):475–477*.
- [282] Talley, Chad E., Jackson, Joseph B., Oubre, Chris, Grady, Nathaniel K., Hollars, Christopher W., Lane, Stephen M., Huser, Thomas R., Nordlander, Peter, and Hallas, Naomi J. (2005). Surface-enhanced Raman scattering from individual Au nanoparticles and nanoparticle dimer substrates. *Nano Letters*, 5(8):1569–1574.
- [283] Tarn, Felicia, Moran, Cristin, and Hallas, Naomi (2004). Geometrical parameters controlling sensitivity of nanoshell plasmon resonances to changes in dielectric environment. *J. Phys. Chem. B*, 108:17290–17294.
- [284] Tan, W.-C., Preist, T. W., and Sambles, R. J. (2000). Resonant tunneling of light through thin metal films via strongly localized surface plasmons. *Phys. Rev. B*, 62(16):11134–11138.
- [285] Tanaka, Kazuo and Tanaka, Masahiro (2003). Simulations of nanometric optical circuits based on surface plasmon polariton gap waveguide. *Appl. Phys. Lett.*, 82(8):1158–1160.
- [286] Teperik, T. V., and Popov, V. V. (2004). Radiative decay of plasmons in a metallic nanoshell. *Phys. Rev.* 5,69:155402.

- [287] Thio, Tineke, Pellerin, K.M., Linke, R.A., Lezec, H.J., and Ebbesen, T.W. (2001). Enhanced light transmission through a single subwavelength aperture. *Opt. Lett.*, 26(24):1972–1974.
- [288] Tian, Zhong-Qun, and Ren, Bin (2004). Adsorption and reaction of electrochemical interfaces as probed by surface-enhanced Raman spectroscopy. *Ann. Rev. Phys. Chem.*, 55:197–229.
- [289] Tsai, Woo-Hu, Tsao, Yu-Chia, Lin, Hong-Yu, and Sheu, Bor-Chiou (2005). Cross-point analysis for a multimode fiber sensor based on surface plasmon resonance. *Opt. Lett.*, 30(17):2209–2211.
- [290] van der Molen, K.L., Segerink, E.B., van Hulst, N.F., and Kuipers, L. (2004). Influence of hole size on the extraordinary transmission through subwavelength hole arrays. *Appl. Phys. Lett.*, 85(19):4316–4318.
- [291] van Exter, Martin and Grischkowsky, Daniel R. (1990). Characterization of an optoelectronic terahertz beam system. *IEEE Transactions on Microwave Theory and Techniques*, 38(11):1684–1691.
- [292] Veronis, Georgios and Fan, Shanhui (2005). Guided subwavelength plasmonic mode supported by a slot in a thin metal film. *Opt. Lett.*, 30(24):3359–3361.
- [293] Vial, Alexandre, Grimault, Anne-Sophie, Macfas, Demetrio, Barchiesi, Dominique, and de la Chapelle, Marc Lamy (2005). Improved analytical fit of gold dispersion: Application to the modeling of extinction spectra with a finite-difference time-domain method. *Phys. Rev. B*, 71:085416.
- [294] Vincent, R., and Silcox, J. (1973). Dispersion of radiative surface plasmons in aluminum films by electron scattering. *Phys. Rev. Lett.*, 31(25):1487–1490.
- [295] Vuckovic, J., Loncar, M., and Scherer, A. (2000). Surface plasmon enhanced light-emitting diode. *IEEE J. Quan. Elec.*, 36(10):1131–1144.
- [296] Wachter, M., Nagel, M., and Kurz, H. (2005). Frequency-dependent characterization of THz Sommerfeld wave propagation on single-wires. *Opt. Express*, 13(26):10815–10822.
- [297] Wait, James R. (1998). The ancient and modern history of EM ground-wave propagation. *IEEE Antennas and Propagation Magazine*, 40(5):7–24.
- [298] Wang, Kanglin and Mitfleman, Daniel M. (2005). Metal wires for terahertz wave guiding. *Nature*, 432:376–379.

- [299] Wang, Qian-jin, Li, Jia-qi, Huang, Cheng-ping, Zhang, Chao, and Zhu, Yong-Yuan (2005). Enhanced optical transmission through metal films with rotation-symmetrical hole arrays. *Appl. Phys. Lett.*, 87:091105.
- [300] Watanabe, Hiroyuki, Ishida, Yasuhito, Hayazawa, Norihiko, Inouye, Yasishi, and Kawata, Satoshi (2004). Tip-enhanced near-field Raman analysis of tip-pressurized adenine molecule. *Phys. Rev. B*, 69:155418.
- [301] Watts, Richard A., and Sambles, J. Roy (1997). Polarization conversion from blazed diffraction gratings. *J. Mod. Opt.*, 44(6):1231–1242.
- [302] Webb, K. J., and Li, J. (2006). Analysis of transmission through small apertures in conducting films. *Phys. Rev. B*, 73:033401.
- [303] Weber, W. H., and Ford, G. W. (2004). Propagation of optical excitations by dipolar interactions in metal nanoparticle chains. *Phys. Rev. B*, 70:125429.
- [304] Wedge, S., Hooper, I. R., Sage, I., and Barnes, W. L. (2004). Light emission through a corrugated metal film: The role of cross-coupled surface plasmon polaritons. *Phys. Rev. B*, 69:245418.
- [305] Weeber, J.-C., Krenn, J. R., Dereux, A., Lamprecht, B., Lacroute, Y., and Goudonnet, J. P. (2001). Near-field observation of surface plasmon polariton propagation on thin metal stripes. *Phys. Rev. B*, 64:045411.
- [306] Weeber, Jean-Claude, Lacroute, Yvon, and Dereux, Alain (2003). Optical near-field distributions of surface plasmon waveguide modes. *Phys. Rev. B*, 68:115401.
- [307] Weeber, Jean-Claude, Lacroute, Yvon, Dereux, Alain, Devaux, Eloise, Ebbesen, Thomas, Girard, Christian, Gonzalez, Maria Ujue, and Baudrion, Anne-Laure (2004). Near-field characterization of Bragg mirrors engraved in surface plasmon waveguides. *Phys. Rev. B*, 70:235406.
- [308] Weitz, D. A., Garoff, S., Gersten, J. I., and Nitzan, A. (1983). The enhancement of Raman scattering, resonance Raman scattering, and fluorescence from molecules adsorbed on a rough silver surface. *J. Chem. Phys.*, 78(9):5324–5338.
- [309] Westcott, S. L., Jackson, J. B., Radloff, C., and Halas, N. J. (2002). Relative contributions to the plasmon line shape of metallic nanoparticles. *Phys. Rev. B*, 66:155431.
- [310] Wilcoxon, J. P., and Martin, J. E. (1998). Photoluminescence from nanosize gold clusters. *J. Chem. Phys.*, 108(21):9137–9143.

- [311] Winter, G., and Barnes, W. L. (2006). Emission of light through thin silver films via near-field coupling to surface plasmon polaritons. *Appl. Phys. Lett.*, 88:051109.
- [312] Wokaun, A., Gordon, J. P., and Liao, P. F. (1982). Radiation damping in surface-enhanced Raman scattering. *Phys. Rev. Lett.*, 48(14):957–960.
- [313] Wood, R. W. (1902). On a remarkable case of uneven distribution of light in a diffraction grating spectrum. *Proc. Phys. Soc. London*, 18:269–275.
- [314] Wurtz, Gregory A., Im, Jin Seo, Gray, Stephen K., and Wiederrecht, Gary P. (2003). Optical scattering from isolated metal nanoparticles and arrays. *J. Phys. Chem. B*, 107(51):14191–14198.
- [315] Xu, Hongxing (2004). Theoretical study of coated spherical metallic nanoparticles for single-molecule surface-enhanced spectroscopy. *Appl. Phys. Lett.*, 85(24):5980–5982.
- [316] Xu, Hongxing, Aizpurua, Javier, Käll, Mikael, and Apell, Peter (2000). Electromagnetic contributions to single-molecule sensitivity in surface-enhanced Raman scattering. *Phys. Rev. J*, 62(3):4318–4324.
- [317] Xu, Hongxing, Wang, Xue-Hua, and Käll, Mikael (2002). Surface-plasmon-enhanced optical forces in silver nanoaggregates. *Phys. Rev. Lett.*, 89(24):246802.
- [318] Xu, Hongxing, Wang, Xue-Hua, Persson, Martin P., Xu, H. W., and Kail, Mikael (2004). Unified treatment of fluorescence and Raman scattering processes near metal surfaces. *Phys. Rev. Lett.*, 93:243002.
- [319] Yamamoto, N., Araya, K., and de Abajo, F. J. Garcia (2001). Photon emission from silver particles induced by a high-energy electron beam. *Phys. Rev. B*, 64:205419.
- [320] Yariv, Amnon (1997). *Optical Electronics in Modern Communications*. Oxford University Press, Oxford, UK, fifth edition.
- Yen, T. J., Padilla, W. J., Fang, N., Vier, D. C., Smith, D. R., Pendry, J. B., Basov, D. N., and Zhang, X. (2004). Terahertz magnetic response from artificial materials. *Science*, 303:1494–1496.
- [321] Yin, L., Vlasko-Vlasov, V. K., Rydh, A., Pearson, J., Welp, U., Chang, S.-H., Gray, S. K., Schatz, G. C., Brown, D. B., and Kimball, C. W. (2004). Surface plasmons at single nanoholes in Au films. *Appl. Phys. Lett.*, 85(3):467–469.
- [322] Yin, Leilei, Vlasko-Vlasov, Vitali K., Pearson, John, Hiller, Jon M., Hua, Jiong, Welp, Ulrich, Brown, Dennis E., and Kimball, Clyde W. (2005).

- Subwavelength focusing and guiding of surface plasmons. *Nano Letters*, 5(7):1399–1402.
- [323] Zayats, A. V. and Smolyaninov, I. I. (2006). High-optical throughput individual nanoscale aperture in a multilayered metallic film. *Opt. Lett.*, 31(3):398–400.
- [324] Zenneck, J. (1907). Über die Fortpflanzung ebener elektromagnetischer Wellen langs einer ebenen Leiterfläche und ihre Beziehung zur drahtlosen Telegraphie *Ann. d. Phys.*, 23:846–866.
- [325] Zhang, Y., Gu, C., Schwartzberg, A. M., and Zhang, J. Z. (2005). Surface-enhanced Raman scattering sensor based on D-shaped fiber. *Appl. Phys. Lett.*, 87:123105.
- [326] Zhou, J., Koschny, Th., Kafesaki, M., Economou, E. N., Pendry, J. B., and Soukoulis, C. M. (2005). Saturation of the magnetic response of split-ring resonators at optical frequencies. *Phys. Rev. Lett.*, 95:223902.
- [327] Zia, Rashid, Chandran, Ami, and Brongersma, Mark L. (2005a). Dielectric waveguide model for guided surface polaritons. *Opt. Lett.*, 30(12):1473–1475.
- [328] Zia, Rashid, Selker, Mark D., and Brongersma, Mark L. (2005b). Leaky and bound modes of surface plasmon waveguides. *Phys. Rev. B*, 71:165431.
- [329] Zia, Rashid, Selker, Mark D., Catrysse, Peter B., and Brongersma, Mark L. (2005c). Geometries and materials for subwavelength surface plasmon modes. *J. Opt. Soc. Am. A*, 21(12):2442.

Предметный указатель

- TE-моды, 25
TM-моды, 25
- аномальный скин-эффект, 12
апертура, 167
— апертурный массив, 171–178
— бычий глаз, 174, 179
— волноводная апертура, 171, 175, 179
— локализованные плазмоны, 182
— направленное испускание, 178–182
— одиночная апертура с канавками, 174
— применение экстраординарного пропускания, 187
— прямоугольная апертура, 185
— эффективный диаметр, 182
- безразмерный показатель, 84
безызлучательная передача энергии, 62
биосенсор
— на основе ППП, 226–230
— на основе волновода ППП, 227
— на основе волокна, 223
— одночастичный, 214
— проектирование, 212
— функционализация, 212
— чувствительное к фазе обнаружение, 226
ближнепольная оптическая микроскопия, 53, 89, 215
— зонд, 59
— режим освещения, 61
— режим улавливания, 58
- ввод излучения волоконным наконечником, 56
вектор Пойнтинга, 20
внеосевой ввод излучения, 106, 118, 130
волна Зоммерфельда–Зеннека, 29, 103
волновое уравнение, 9, 22
восприимчивость, 7
время релаксации газа свободных электронов, 10
- геометрический фактор, 82
гетероструктура
диэлектрик/металл/диэлектрик, 34, 135
гетероструктура
металл/диэлектрик/металл, 35, 152
глубина скин-слоя, 11
горячие зоны, 190, 210
- деполяризующее поле, 84, 100
дипольное поле, 78–79
дисперсионное соотношение
— ППП на одиночной границе раздела сред, 27, 50
— газа свободных электронов, 15
— естественное, 9

- объемных плазмонов, 18
- трехслойной системы, 33
- дисперсия
 - временная, 7
 - пространственная, 7
- дифракционный предел, 37
- дифракционный предел диэлектрического волновода, 147
- дифракция, 167
- дифракция Фраунгофера, 168
- диэлектрическая проницаемость
 - вакуума, 6
- диэлектрическая функция, 7
 - взаимосвязь с проводимостью, 8
 - газа свободных электронов, 10–11
- диэлектрическая функция золота, 12
- диэлектрическая функция серебра, 18
- закон Бера, 9
- запрещенный свет, 53
- затухание Ландау, 16
- затухание, связанное с размытием границ, 86
- излучательное затухание, 84
- излучение дифракционных потерь, 46, 53, 65–69
- изменение поляризуемости, 70
- катодолуминесценция, 184, 220
- квазистатическое приближение, 74
- квантовая эффективность рассеяния света, 86
- комбинационный эффект, 190
- конфигурация Кречмана, 46
- конфигурация Отто, 46
- концентрирующая дифракционная решетка, 70
 - локализованные моды, 50
 - с использованием массива отверстий, 49
 - эффективность, 66
- коэффициент Перселя, 195
- коэффициент деполяризации, 82
- коэффициент поглощения, 9, 11
- коэффициент пропускания сквозь субволновую апертуру, 169
- коэффициент экстинкции, 9
- локализованный плазмон
 - ансамбли частиц, 91–97
 - в малых частицах, 86
 - в усиливающих средах, 99–100
 - время дефазировки, 85
 - время распада, 85
 - дипольная мода, 76
 - добротность, 85
 - затухание, 84
 - модель гибридизации, 98
 - на терагерцевых частотах, 108
 - нанополость, 97
 - однородная ширина спектральной линии, 85
 - связывание в ближнем поле, 92–95, 154
 - связывание в дальнем поле, 95
- магнитная проницаемость
 - вакуума, 6
 - относительная, 7
- материальные уравнения, 6–7
 - в фурье-представлении, 8
- межзонные переходы, 18–20, 84
- метаматериал, 109, 233
 - идеальная линза, 240
 - отрицательная магнитная проницаемость, 235
 - отрицательное преломление, 237

- отрицательный показатель преломления, 234
- резонатор в форме разрезного кольца, 235
- мечение молекул, 220
- микроскопия экстинкции в дальнем поле, 88
- модель Друде, 13
- модель Максвелла–Гарнетта, 210
- нелинейные процессы, 209–210
- низколежащие энергетические потери, 42
- объемный плазмон, 16
- плазменная частота, 10, 16, 102
- плазменная литография, 242
- плазмонный волновод
 - в усиливающих средах, 163
 - волновод с канавками, 152
 - дальнедействующий, 136
 - линейный дефект в структуре запрещенной зоны, 133
 - маршрутизация за счет рассеяния, 127
 - мода утечки, 67, 140
 - нанопровод, 147–150
 - наночастичная цепь, 95, 154–163
 - полоса в однородном носителе, 136–140
 - полоса на подложке, 140–146
 - полосы, 135–146
 - со связью через волоконный наконечник, 56, 159
 - щелевой волновод, 163
 - щелевые волноводы, 152
- плотность электромагнитной энергии, 20
 - в дисперсионной среде, 20
 - поверхностные фонон-поляритоны, 117–121
 - поверхностный плазмон, 29, 41
 - поверхностный плазмон-поляритон (ППП)
 - ТГц, 106
 - брэгговский отражатель, 127
 - в сильно разбавленном полупроводнике, 104
 - дальнедействующий, 35, 48, 56
 - дальность распространения, 29, 61
 - дефектное рассеяние, 127
 - запрещенные зоны, 132
 - излучательная ветвь, 43
 - модовое удержание, 30
 - модуляция фазовой скорости, 128
 - на металлическом проводе, 108
 - преломление, 128
 - суперфокусирование с помощью конических структур, 150
 - фокусирование, 128, 130
 - эффективный показатель, 144, 163
 - показатель преломления, 9
 - полосы диффузного света, 70
 - поляризуемость
 - нанополости, 97
 - сферы, 84
 - сферы ядро/оболочка, 98
 - сферы ядро/оболочка, квазистатическая, 82
 - сферы, квазистатическая, 76
 - эллипсоида, 90
 - эллипсоида, квазистатическая, 80
 - поперечное сечение
 - поглощения, 79
 - рассеяния, 79
 - экстинкции, 80

- призмный ввод излучения, 46, 60, 65
- принцип Гюйгенса–Френеля, 168
- проводимость, 7
- взаимосвязь с диэлектрической функцией, 8
 - статическая, 11
- продольный ввод излучения, 56, 140, 152
- решеточный ввод излучения, 48
- сконструированный поверхностный плазмон–поляритон, 108–117
- в двумерном массиве отверстий, 112–114
 - в одномерном массиве канавок, 109–112
- спектроскопия временной области на терагерцовых частотах, 104
- спектроскопия полного внутреннего отражения, 214
- спектроскопия электронных потерь, 42
- темнопольная микроскопия, 85, 89, 218
- теория дифракции Кирхгофа, 168
- уравнение Гельмгольца, 23
- уравнения Максвелла, 4–5
- усиленное поверхностью комбинационное рассеяние (SERS)
- коэффициент электромагнитного усиления, 193
 - локализованный поверхностный плазмон, 192
 - модель резонатора, 194–197
 - на металлической решетке нанополостей, 199
 - на шероховатой поверхности, 197
 - одномолекулярная чувствительность, 197
 - с массивом нанопроводов, 200
 - с металлическими наночастицами, 187
 - усиленное на острие, 201
 - химический вклад, 192
 - электромагнитный вклад, 192
 - электронный вклад, 192
 - эффект громковода, 192
- условие Фролиха, 76, 97
- флуоресценция, 187, 203
- гасящая, 62, 86
 - квантового выхода, 204
 - получение изображения полей ППП, 62–63
- фотолюминесценция, 208–209
- фотонная сканирующая туннельная микроскопия, 58
- фотонный кристалл, 233
- фототермическая микроскопия, 220
- частота поверхностного плазмона, 29
- частота соударений в газе свободных электронов, 10
- электронная дифракция, 42
- эффективная модовая длина, 38
- эффективный модовый объем, 38

Интересующие Вас книги нашего издательства можно заказать почтой или электронной почтой:

subscribe@rcd.ru

Внимание: дешевле и быстрее всего книги можно приобрести через наш Интернет-магазин:

<http://shop.rcd.ru>

Книги также можно приобрести:

1. Москва, ИМАШ, ул. Бардина, д. 4, корп. 3, к. 414,
тел.: (499) 135-54-37, (495) 641-69-38
2. МГУ им. Ломоносова (ГЗ, 1 этаж)
3. Магазины:

Москва: «Дом научно-технической книги» (Ленинский пр., 40)

«Московский дом книги» (ул. Новый Арбат, 8)

Книжный магазин «ФИЗМАТКНИГА» (г. Долгопрудный,
Новый корпус МФТИ, 1 этаж, тел. 409-93-28)

С.-Пб.: «С.-Пб. дом книги» (Невский пр., 28)

Стефан А. Майер

ПЛАЗМОНИКА: ТЕОРИЯ И ПРИЛОЖЕНИЯ

*Технический редактор А. В. Широбоков
Компьютерный набор и верстка А. В. Моторин
Корректор О. А. Шемякина*

Подписано в печать 06.04.2011. Формат 60 × 84¹/₁₆.

Печать офсетная. Усл. печ. л. 17,21. Уч. изд. л. 17,89.

Гарнитура Таймс. Бумага офсетная № 1. Заказ № 11-15.

Научно-издательский центр «Регулярная и хаотическая динамика»

426034, г. Ижевск, ул. Университетская, 1.

<http://shop.rcd.ru> E-mail: mail@rcd.ru Тел./факс: (+73412) 500-295

