

УДК 535.13

А. Е. БАБАЯН

О ПРИРОДЕ ВОЗРАСТАНИЯ НЕЛИНЕЙНОГО ОПТИЧЕСКОГО ОТКЛИКА ОТ ШЕРОХОВАТОЙ ПОВЕРХНОСТИ

Рассмотрены условия сверхфокусировки поверхностных плазмон-поляритонов (ППП) в системе двух соприкасающихся конусов, где один из них – металл, а другой – диэлектрик с большим показателем преломления. Выявлены закономерности роста волновых полей ППП в зависимости от параметров системы.

Рассмотренное явление позволяет предложить более простые пути экспериментального исследования процесса аномального возрастания оптического нелинейного отклика от поверхности.

Введение. Исследование поверхности не может быть полным без анализа полученного от нее нелинейного оптического отклика. Примечательно, что на поверхности кристалла нарушается его симметрия. Это позволяет обнаружить нелинейные явления, которые не наблюдаются внутри кристалла.

Особый интерес представляет изучение нелинейного оптического отклика, полученного от молекул адсорбированных на поверхности металла. Оказывается, что этот отклик существенно возрастает при наличии на поверхности шероховатостей определенного типа. В частности, максимальное усиление регистрируется, когда поверхность серебра или золота покрыта шарами нанометрических размеров из того же материала. Эксперименты показывают, что в этом случае по сравнению с плоской поверхностью рамановское рассеяние может возрасти в 10^6 раз, а генерация второй гармоники – в 10^4 раз [1–5].

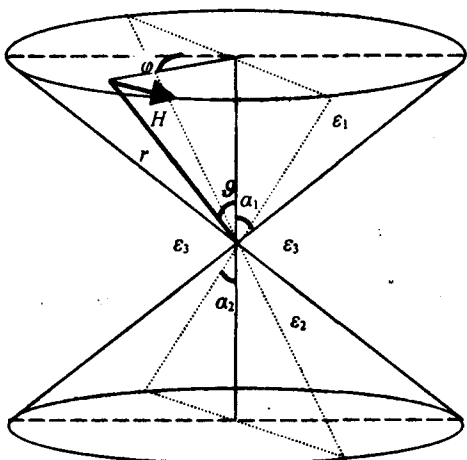
Поскольку это явление регистрируется исключительно на шероховатых поверхностях золота или серебра, то можно заключить, что оно обусловлено возбуждением поверхностных плазмон-поляритонов (ППП). Это происходит потому, что в этих металлах электронные диссипационные потери относительно невелики, что создает благоприятные условия для формирования ППП. Можно предположить, что характерные для ППП волновые поля аномально возрастают на шероховатостях поверхности.

Теоретический анализ показывает, что в ходе распространения ППП по геометрическим структурам определенного типа длина волны может существенно уменьшаться. Тогда дифракционные процессы не препятствуют лока-

лизации волны в нанометрических размерах, и в результате аномально возрастают волновые поля [6–8]. Это так называемое явление сверхфокусировки ППП в частности реализуется в системах соприкасающихся шаров или конусообразных вершин. Когда угол раствора одного из соприкасающихся конусов стремится к π , или радиус одного из шаров стремится к бесконечности, то исследуемое явление может служить основой для объяснения гигантского роста нелинейного отклика от шероховатой поверхности [9].

Так как нелинейный отклик от металлов слаб, то в описанных опытах необходимо наличие дополнительных адсорбированных молекул. В настоящей работе будет показано, что можно зарегистрировать гигантское усиление нелинейного сигнала при замене металлических шаров диэлектрическими наночастицами, обладающими нелинейными свойствами. Тогда нет необходимости в наличии дополнительных адсорбированных атомов и экспериментальное исследование существенно упрощается.

Теоретическая часть. В настоящей работе рассматривается возможность сверхфокусировки ППП в системе двух соприкасающихся конусов (см. рисунок), где один из них – металл, а другой – диэлектрик с большим показателем преломления.



Обозначим диэлектрические проницаемости диэлектрического конуса через ϵ_1 , металлического конуса – ϵ_2 , а окружающей среды – ϵ_3 . Полагаем, что в сферической системе координат (r, ϑ, φ) отлична от нуля только φ -компонента магнитного поля H_φ , для которого волновое уравнение можно представить в виде:

$$\frac{\partial^2 H_\varphi}{\partial r^2} + \frac{2}{r} \frac{\partial H_\varphi}{\partial r} + \frac{1}{r^2} \left[\frac{\partial^2 H_\varphi}{\partial \vartheta^2} + \frac{\cos \vartheta}{\sin \vartheta} \frac{\partial H_\varphi}{\partial \vartheta} - \frac{H_\varphi}{\sin^2 \vartheta} \right] + \epsilon_j \frac{\omega^2}{c^2} H_\varphi = 0, \quad j=1,2,3. \quad (1)$$

Задача решается методом разделения переменных. Решение будем искать в виде

$$H_\varphi = R(r) \Psi(\vartheta) e^{i\omega t}. \quad (2)$$

Подставив (2) в (1), для $R(r)$ и $\Psi(\vartheta)$ получим следующие уравнения:

$$\frac{d^2 R}{dr^2} + \frac{2}{r} \frac{dR}{dr} + \left(\frac{\eta^2}{r^2} + \epsilon_j \frac{\omega^2}{c^2} \right) R = 0, \quad (3)$$

$$\frac{d^2 \Psi}{d\vartheta^2} + \frac{\cos \vartheta}{\sin \vartheta} \frac{d\Psi}{d\vartheta} - \left(\eta^2 + \frac{1}{\sin^2 \vartheta} \right) \Psi = 0, \quad (4)$$

где η ($\eta \gg 1$) – коэффициент разделения, ω – частота волны, c – скорость света.

При условии

$$\frac{\eta^2}{r^2} \gg |\varepsilon_j| \frac{\omega^2}{c^2} \quad (5)$$

решение (3) принимает вид:

$$R(r) = r^{-1/2} \exp \left[i \int_{r_0}^r k(r') dr' \right], \quad k(r) = \frac{\sqrt{\eta^2 - 1/4}}{r} \approx \frac{\eta}{r}. \quad (6)$$

Полагаем, что решение (4) существенно отлично от нуля в непосредственной окрестности угла $\vartheta = \frac{\pi}{2}$. Переходя в (4) к новой переменной

$x = \vartheta - \frac{\pi}{2}$ ($|x| \ll 1$), разлагая в ряд значения $\sin x$ и $\cos x$ и оставляя члены первой степени малости, получим

$$\frac{d^2 \Psi}{dx^2} - x \frac{d\Psi}{dx} - \eta^2 \Psi = 0. \quad (7)$$

Решение уравнения (7) имеет следующий вид:

$$\Psi(x) = C \exp(\pm \eta x). \quad (8)$$

В результате получаем следующее решение уравнения (1):

$$H_\varphi(r, \vartheta) = H_{\varphi 0} r^{-1/2} \exp \left(\pm \eta \left(\vartheta - \frac{\pi}{2} \right) \right) \exp \left[i \int_{r_0}^r k(r') dr' \right] \exp(i\omega t). \quad (9)$$

Для компоненты магнитного поля получим

$$H_{\varphi 1}(r, \vartheta) = A r^{-1/2} \exp \left(\eta \left(\vartheta - \frac{\pi}{2} \right) \right) \exp \left[i \int_{r_0}^r k(r') dr' \right] \exp(i\omega t), \quad 0 \leq \vartheta \leq \alpha_1; \quad (10)$$

$$H_{\varphi 2}(r, \vartheta) = r^{-1/2} \left\{ B \exp \left(\eta \left(\vartheta - \frac{\pi}{2} \right) \right) + C \exp \left(-\eta \left(\vartheta - \frac{\pi}{2} \right) \right) \right\} \exp \left[i \int_{r_0}^r k(r') dr' \right] \exp(i\omega t), \\ \alpha_1 \leq \vartheta \leq \pi - \alpha_2; \quad (11)$$

$$H_{\varphi 3}(r, \vartheta) = D r^{-1/2} \exp \left(-\eta \left(\vartheta - \frac{\pi}{2} \right) \right) \exp \left[i \int_{r_0}^r k(r') dr' \right] \exp(i\omega t), \quad \pi - \alpha_2 \leq \vartheta \leq \pi. \quad (12)$$

С помощью уравнений Максвелла для компонент электрического поля получим:

$$E_{r1}(r, \vartheta) = -\frac{i\eta A}{\varepsilon_1 \omega r^{3/2}} \exp \left(\eta \left(\vartheta - \frac{\pi}{2} \right) \right) \exp \left[i \int_{r_0}^r k(r') dr' \right] \exp(i\omega t), \quad 0 \leq \vartheta \leq \alpha_1; \quad (13)$$

$$E_{r2}(r, \vartheta) = -\frac{i\eta}{\varepsilon_3 \omega r^{3/2}} \left\{ B \exp \left(\eta \left(\vartheta - \frac{\pi}{2} \right) \right) - C \exp \left(-\eta \left(\vartheta - \frac{\pi}{2} \right) \right) \right\} \exp \left[i \int_{r_0}^r k(r') dr' \right] \exp(i\omega t), \\ \alpha_1 \leq \vartheta \leq \pi - \alpha_2; \quad (14)$$

$$E_{r3}(r, \vartheta) = \frac{i\eta D}{\varepsilon_2 \omega r^{3/2}} \exp \left(-\eta \left(\vartheta - \frac{\pi}{2} \right) \right) \exp \left[i \int_{r_0}^r k(r') dr' \right] \exp(i\omega t), \quad \pi - \alpha_2 \leq \vartheta \leq \pi. \quad (15)$$

Для граничных условий имеем:

$$E_{r1}(r, \alpha_1) = E_{r2}(r, \alpha_1), \quad (16)$$

$$H_{\varphi 1}(r, \alpha_1) = H_{\varphi 2}(r, \alpha_1), \quad (17)$$

$$E_{r2}(r, \pi - \alpha_2) = E_{r3}(r, \pi - \alpha_2), \quad (18)$$

$$H_{\varphi 2}(r, \pi - \alpha_2) = H_{\varphi 3}(r, \pi - \alpha_2). \quad (19)$$

Отсюда получается следующее дисперсионное соотношение:

$$\eta = \frac{1}{2(\pi - \alpha_1 - \alpha_2)} \ln \frac{(\varepsilon_1 - \varepsilon_3)(\varepsilon_2 - \varepsilon_3)}{(\varepsilon_1 + \varepsilon_3)(\varepsilon_2 + \varepsilon_3)} \quad (20)$$

или

$$th(\eta(\pi - \alpha_1 - \alpha_2)) = -\frac{\varepsilon_3(\varepsilon_1 + \varepsilon_2)}{\varepsilon_3^2 + \varepsilon_1\varepsilon_2}. \quad (21)$$

В пределе $\alpha_2 = \frac{\pi}{2}$, и из (21) получим дисперсионное соотношение для ППП в системе диэлектрический конус–металлическая поверхность:

$$th\left(\eta\left(\frac{\pi}{2} - \alpha_1\right)\right) = -\frac{\varepsilon_3(\varepsilon_1 + \varepsilon_2)}{\varepsilon_3^2 + \varepsilon_1\varepsilon_2}. \quad (22)$$

Из полученных результатов видно, что распространение ППП в этих структурах имеет следующие особенности: во-первых, при $r \rightarrow 0$ волновое число ППП возрастает по закону η/r , и, следовательно, длина волны неограниченно уменьшается, во-вторых, в этом случае дифракционные процессы не препятствуют локализации волны. В результате магнитное (H_φ) и электрическое (E_r) поля возрастают соответственно по закону $H \sim r^{-1/2}$ и $E \sim r^{-3/2}$.

Из полученных соотношений для компонент поля видно, что для сильной локализации волны необходимо выполнение условия $\eta \gg 1$, а из дисперсионного соотношения (20) следует, что сверхфокусировку ППП можно наблюдать при условии

$$\frac{(\varepsilon_1 - \varepsilon_3)(\varepsilon_2 - \varepsilon_3)}{(\varepsilon_1 + \varepsilon_3)(\varepsilon_2 + \varepsilon_3)} > 1. \quad (23)$$

Это условие выполняется в различных физических ситуациях.

В случае двух соприкасающихся конусов, когда $\varepsilon_1 < 0$, $\varepsilon_2 < 0$, сверхфокусировка ППП возможна при условии $|\varepsilon_1|, |\varepsilon_2| > 1$ или $|\varepsilon_1|, |\varepsilon_2| < 1$. Первое из указанных условий в эксперименте легче реализовать, так как модули диэлектрических проницаемостей как для золота, так и для серебра значительно превосходят диэлектрическую проницаемость окружающей систему газовой среды. Именно эта модель позволяет объяснить гигантское возрастание рамановского рассеяния и генерацию второй гармоники в экспериментах [10, 11].

С точки зрения экспериментальных исследований определенный интерес представляет возможность наблюдения сверхфокусировки ППП в случае,

когда один из соприкасающихся конусов – диэлектрик ($\varepsilon_1 > 0$). Из (20) следует, что гигантское возрастание волновых полей может иметь место также в случае $\varepsilon_3 < |\varepsilon_2| < \varepsilon_1$.

Если диэлектрик обладает нелинейными оптическими свойствами, то исчезает необходимость в адсорбированных молекулах. Тогда, покрывая плоскую поверхность металла диэлектрическими частицами нанометрических размеров, можем существенно увеличить нелинейный отклик от поверхности.

В эксперименте при длине волны падающего света $\lambda = 0,59 \mu\text{м}$ (лазер на красителе родамин 6G) в качестве металлической поверхности может выступать золото ($\varepsilon_2 = -8,2$), а в качестве диэлектрика – GaP ($\varepsilon_1 = 11,34$), который обладает большой нелинейной проницаемостью [12].

Заключение. Таким образом, сильная локализация ППП и аномальное возрастание волновых полей возможны не только в окрестности точки соприкосновения металлических сред, но также и в окрестности точки соприкосновения металл–диэлектрик (или полупроводник). Это позволяет использовать более простые экспериментальные схемы для исследования нелинейного отклика от поверхности, так как диэлектрик может взять на себя также функции нелинейной среды.

Кафедра радиофизики сверхвысоких частот и телекоммуникаций

Поступила 25.02.2005

ЛИТЕРАТУРА

1. Raether H. Surface Plasmons on Smooth and Rough Surfaces and on Gratings. Berlin: Springer-Verlag, 1988.
2. Mills D.L., Maradudin A.A. – Phys. Rev. Lett., 1973, v. 31, p. 372.
3. Babajanyan A.J., Margaryan N.L., Nerkararyan Kh.V. – J. Appl. Phys., 2000, v. 89, № 8, p. 3785.
4. Beckmann P., Spizzichino A. Scattering of electromagnetic waves from rough surface. London: Pergamon press, 1963.
5. Babajanyan A.J., Haroutyunyan S.V., Nerkararyan Kh.V. – Spie-Proc., 2000, v. 4060, p. 142.
6. Chang R.K., Furtak T.E. Surface Enhanced Raman Scattering. New York: Plenum, 1982.
7. Nerkararyan Kh.V. – Phys. Lett. A, 1997, v. 237, p. 103.
8. Garcia-Vidal F.J., Pendry J.B. – Phys. Rev. Lett., 1996, v. 77, p. 1163.
9. Jha S.S., Kirtley J.R. and Tsang J.C. – Phys. Rev. B, 1980, v. 22, p. 3973.
10. Janunts N.A., Bagdasaryan K.S., Nerkararyan Kh.V. – Phys. Lett. A, 2000, v. 269, p. 257–260.
11. Lalayan A.A., Bagdasaryan K.S., Petrosyan P.G., Nerkararyan Kh.V. – J. Appl. Phys., 2002, v. 91, p. 2965–2968.
12. Блистанов А.А., Бандаренко В.С. и др. Акустические кристаллы. М.: Наука, 1982.

ՕՊՏԻԿԱԿԱՆ ՈՉ ԳԾԱՅԻՆ ԱՐՉԱԳԱՆՔԻ ԱՃԸ ՄԱԿԵՐԵՎՈՒԹԱՅԻՆ
ԱՆՀԱՐԹՈՒԹՅՈՒՆՆԵՐԻՑ

Ամփոփում

Հետազոտվել են մակերևութային պլազմոն-պոլյարիտոնների (ՄՊՊ) գերֆոկուսացման պայմանները երկու հպվող կոներից կազմված համակարգում, երբ կոներից մեկը մետաղ է, մյուսը՝ մեծ բեկման ցուցիչով դիէլեկտրիկ: Բացահայտվել են ՄՊՊ-ի ալիքային դաշտերի աճի օրինաչափությունները՝ կախված համակարգի բնութագրիչներից: Դիտարկվող երևույթը հնարավորություն է տալիս փորձարարական ուղիներ առաջարկել մակերևութից ստացվող օպտիկական ոչ գծային արձագանքի անոմալ աճը հետազոտելու համար:

A. E. BABAYAN

ABOUT THE NATURE OF THE ENHANCEMENT OF THE NONLINEAR
OPTICAL RESPONSE FROM ROUGH SURFACE

Summary

It is treated the superfocusing conditions of the surface plasmon polaritons (SPPs) in the system of two touching cones, when one of the cones is of metal and the other is a semiconductor. It is discovered the regularities of increasing of wave fields SPPs depending on the parameters of system. The considering phenomena give possibility to propose the experimental way for exploring the anomalous enhancement of the nonlinear optical response from rough surface.