

ОПТИКА И СПЕКТРОСКОПИЯ. ЛАЗЕРНАЯ ФИЗИКА

Исследование плазмонных резонансов локальных структур на основе метода дискретных источниковН. В. Гришина^{1,a}, Ю. А. Еремин^{2,b}, А. Г. Свешников¹*Московский государственный университет имени М. В. Ломоносова, ¹ физический факультет, кафедра математики; ² факультет вычислительной математики и кибернетики, кафедра математической физики. Россия, 119991, Москва, Ленинские горы, д. 1.**E-mail: ^a ngrishina@inbox.ru, ^b eremin@cs.msu.ru*

Статья поступила 01.06.2011, подписана в печать 27.07.2011

Предложена и реализована модификация метода дискретных источников, позволяющая проводить эффективный численный анализ плазмонных резонансов локальных структур. Численный алгоритм дает возможность вычислять ближнее поле с высокой степенью точности и отслеживать резонансы, при которых интенсивность ближнего поля возрастает на несколько порядков.

Ключевые слова: численный анализ, метод дискретных источников, плазмонный резонанс.

УДК: 535.42, 535.13. PACS: 42.25.-p; 42.25.Fx.

Введение

Непрерывное совершенствование в реализации и использовании металлодиэлектрических наноструктур и возможность определения их оптических свойств выдвинули плазмонику на передний край современной нанооптики и нанотехнологии. Среди многочисленных применений плазмоники в различных отраслях науки и технологии исследование рассеивающих свойств наночастиц из благородных металлов имеет огромный потенциал для практических применений [1–2]. Наночастицы, сделанные из серебра и золота, демонстрируют уникальные оптические свойства благодаря поверхностному плазмонному резонансу (ПР), который дает возможность их использования в качестве средства для изучения биологических молекулярных структур, в сверхразрешающих оптических микроскопах, при разработке оптических антенн и конструировании солнечных батарей [3–4]. Кроме того, чрезвычайно высокая интенсивность электрического поля, возникающая в результате плазмонного резонанса, приводит к резкому возрастанию сигнала от молекулы, расположенной вблизи наночастиц. Подобное (на несколько порядков) усиление сигнала дает возможность обнаруживать и классифицировать отдельные молекулы [2–5].

Современное состояние технологии практической реализации наноразмерных структур требует наличия адекватных средств математического моделирования для предсказания их рассеивающих свойств. В настоящее время существует множество методов, в том числе и строгих, для определения плазмонных резонансов локальных структур. Такие распространенные приближенные методы, как метод конечных разностей во временной области или метод конечных элементов, сталкиваются с определенными трудностями, связанными с отсутствием адекватной оценки погрешности полученных численных результатов, что может приводить к появлению артефактов [5]. Строгие методы, основанные на поверхностных или объемных интегральных уравнениях, несмотря на существенный прогресс, не

позволяют моделировать сверхсильное взаимодействие плазмонных частиц, расположенных на расстояниях порядка 1 нм [6–7].

В данной работе метод дискретных источников (МДИ) [8] был модифицирован для анализа ПР-структуры, состоящей из двух серебряных сфероидов, расположенных на расстояниях порядка 1 нм друг от друга. Выполненная модификация МДИ существенно отличается от схемы, использованной ранее при анализе линейных кластеров атмосферных частиц [9]. Проведен анализ интенсивности поля в точке между сфероидами. Установлено наличие ПР в частотной области как для интенсивности поля, так и для сечения рассеяния поляризованного светового излучения. Показано, что усиление интенсивности электрического поля достигается только при *P*-поляризованном возбуждении и может составлять 10^6 в пике плазмонного резонанса. Исследована зависимость ПР от угла падения возбуждающего света, вытянутости сфероидов и расстояния между ними.

Математическая модель задачи дифракции

Рассмотрим дифракцию электромагнитной плоской волны двумя локальными пронизаемыми частицами $D_{1,2}$, расположенными в R^3 . Пусть частицы имеют гладкие поверхности $\partial D_{1,2}$, и они осесимметричны с общей осью симметрии Oz . Предположим, что плоская волна распространяется под углом $\pi - \theta_0$ по отношению к оси Oz . Тогда задача рассеяния может быть записана в виде

$$\begin{aligned} \operatorname{rot} \mathbf{H}_{e,i} &= jk\varepsilon_{e,i} \mathbf{E}_{e,i}, \operatorname{rot} \mathbf{E}_{e,i} = -jk\mu_{e,i} \mathbf{H}_{e,i} \quad \text{в } D_{e,i}, \\ i &= 1, 2; \quad D_e := R^3 / \sqrt{D_1 \cup D_2}; \\ \mathbf{n}_{1,2} \times (\mathbf{E}_i(P) - \mathbf{E}_e(P)) &= \mathbf{n}_{1,2} \times \mathbf{E}^0(P), \quad i = 1, 2; \\ \mathbf{n}_{1,2} \times (\mathbf{H}_i(P) - \mathbf{H}_e(P)) &= \mathbf{n}_{1,2} \times \mathbf{H}^0(P), \quad P \in \partial D_{1,2}; \\ \lim_{r \rightarrow \infty} \left(\sqrt{\varepsilon_e} \mathbf{E}_e \times \frac{\mathbf{r}}{r} - \sqrt{\mu_e} \mathbf{H}_e \right) &= 0, \quad r = |M| \rightarrow \infty. \end{aligned} \quad (1)$$

Здесь $\{E^0, H^0\}$ — поле плоской волны, $\{E_e, H_e\}$ — рассеянное поле, $\{E_i, H_i\}$, $i = 1, 2$, — полные поля внутри каждой частицы, $\mathbf{n}_{1,2}$ — единичные нормали к поверхностям $\partial D_{1,2}$, $\text{Im } \varepsilon_e, \mu_e = 0$ и $\text{Im } \varepsilon_i, \mu_i \leq 0$. Мы полагаем, что временная зависимость была выбрана в виде $\exp\{j\omega t\}$. Тогда задача дифракции (1) разрешима единственным образом [10].

Для решения поставленной задачи дифракции (1) мы будем использовать МДИ [8]. МДИ является одним из наиболее гибких и наименее затратных методов анализа граничных задач рассеяния. МДИ — это численно-аналитический метод, который не требует использования сеток и процедур интегрирования. В рамках этого метода приближенное решение строится в виде конечной линейной комбинации полей мультиполей, удовлетворяя системе уравнений Максвелла и условиям излучения. Таким образом, амплитуды дискретных источников (ДИ) определяются только из граничных условий на поверхности локальной неоднородности. По идеологии МДИ близок к методу обобщенных мультиполей (МОМ) [11], для несимметричных структур они практически идентичны. Существенное отличие МДИ от МОМ проявляется при анализе осесимметричных структур. Оно состоит в том, что в МДИ используется система распределенных мультиполей низшего порядка (lowest order distributed multipoles), расположенных на оси симметрии или в примыкающей к оси комплексной плоскости. Это позволяет максимально учитывать специфику рассматриваемой задачи, например осевую симметрию неоднородности и поляризацию внешнего возбуждения [8]. В то время как в МОМ используются либо мультиполи, расположенные на вспомогательной поверхности внутри рассеивателя, либо кольцевые токи [11].

В рамках МДИ возможно выбирать различное число ДИ для представления полей вне и внутри неоднородности. Последнее обстоятельство позволяет рассматривать частицы с высоким индексом рефракции. Пожалуй, основным достоинством МДИ, как и МОМ, является возможность апостериорной оценки погрешности полученного приближенного решения, что позволяет контролировать реальную сходимость приближенного решения к точному [8].

Будем строить приближенное решение, принимая во внимание осевую симметрию и поляризацию внешнего возбуждения [12]. В случае p -поляризации поле плоской волны может быть записано как

$$\begin{aligned} \mathbf{E}^0 &= (\mathbf{e}_x \cos \theta_0 + \mathbf{e}_z \sin \theta_0) \cdot \psi, \\ \mathbf{H}^0 &= -\mathbf{e}_y \cos \theta_0 n_0 \cdot \psi, \\ \psi &= \exp\{-jk_e(x \sin \theta_0 - z \cos \theta_0)\}. \end{aligned} \quad (2)$$

где $k_e = k\sqrt{\varepsilon_e \mu_e}$ и $\mathbf{e}_x, \mathbf{e}_y, \mathbf{e}_z$ — декартов базис. Разлагая плоскую волну в ряд Фурье, получим

$$\exp\{\pm j\nu \cos \varphi\} = \sum_{m=0}^{\infty} (2 - \delta_{0m}) (\pm j)^m J_m(\nu) \cos m\varphi;$$

здесь J_m — цилиндрическая функция Бесселя, δ_{0m} — символ Кроннекера. Тогда Фурье компоненты поля плоской волны (2) в цилиндрической системе координат

принимают вид

$$\begin{aligned} \mathbf{E}_m^0 &= \{\mathbf{E}_{m\varphi}^{0,P}(\eta) \cos(m+1)\varphi, \mathbf{E}_{mz}^{0,P}(\eta) \sin(m+1)\varphi, \\ &\quad \mathbf{E}_{mz}^{0,P}(\eta) \cos(m+1)\varphi\}, \\ \mathbf{H}_m^0 &= \{\mathbf{H}_{m\varphi}^{0,P}(\eta) \sin(m+1)\varphi, \mathbf{H}_{m\varphi}^{0,P}(\eta) \cos(m+1)\varphi, \\ &\quad \mathbf{H}_{mz}^{0,P}(\eta) \sin(m+1)\varphi\}. \end{aligned} \quad (3)$$

Чтобы учесть осевую симметрию и поляризацию (3), будем использовать следующие векторные потенциалы:

$$\begin{aligned} \mathbf{A}_{mn}^{1,e,i} &= \{Y_m^{e,i}(\eta, \omega_n^{e,i}) \cos(m+1)\varphi, \\ &\quad -Y_m^{e,i}(\eta, \omega_n^{e,i}) \sin(m+1)\varphi, 0\}, \\ \mathbf{A}_{mn}^{2,e,i} &= \{Y_m^{e,i}(\eta, \omega_n^{e,i}) \sin(m+1)\varphi, \\ &\quad Y_m^{e,i}(\eta, \omega_n^{e,i}) \cos(m+1)\varphi, 0\}, \\ \mathbf{A}_n^{3,e,i} &= \{0, 0, Y_0^{e,i}(\eta, \omega_n^{e,i})\}. \end{aligned} \quad (4)$$

Здесь $Y_m^e(\eta, \omega_n^e) = h_m^{(2)}(k_e R_{\eta\omega_n^e})(\rho/R_{\eta\omega_n^e})^m$, $Y_m^i(\eta, \omega_n^i) = h_m^{(2)}(k_i R_{\eta\omega_n^i})(\rho/R_{\eta\omega_n^i})^m$, $R_{\eta\omega_n^e}^2 = \rho^2 + (z - \omega_n^{e,i})^2$, $\eta = (\rho, z)$, $h_m^{(2)}$ — сферические функции Ханкеля, а $\omega_n^{e,i}$ — комплексные координаты ДИ, расположенные так, что $\text{Re}(\omega_n^e) \in D_i$ и $\text{Re}(\omega_n^i) \in D_e$ [8].

Тогда приближенное решение для рассеянного поля в D_e и полного поля в $D_{1,2}$ принимает следующий вид:

$$\begin{aligned} \mathbf{E}_{e,i}^N &= \sum_{m=0}^M \sum_{n=1}^{N_{e,i}^m} \left\{ p_{mn}^{e,i} \frac{j}{k\varepsilon_{e,i}\mu_{e,i}} \text{rot rot } \mathbf{A}_{mn}^{1,e,i} + q_{mn}^{e,i} \frac{j}{\varepsilon_{e,i}} \text{rot } \mathbf{A}_{mn}^{2,e,i} \right\} + \\ &\quad + \sum_{n=1}^{N_{e,i}^0} r_n^{e,i} \frac{j}{k\varepsilon_{e,i}\mu_{e,i}} \text{rot rot } \mathbf{A}_n^{3,e,i}, \\ \mathbf{H}_{e,i}^N &= \frac{j}{k\mu_{e,i}} \text{rot } \mathbf{E}_{e,i}^N. \end{aligned} \quad (5)$$

Основное отличие приближенного решения (5) от предыдущих вариантов МДИ [9] состоит в том, что внутреннее поле в каждом сфероиде представляется единым набором ДИ — ω_n^i и их амплитуд, как и в случае одного единственного сфероида. Таким образом, частицы взаимодействуют не только через посредство рассеянного поля, но также и «полного поля». Фактически частицы как бы не разрываются.

Совершенно аналогично строится приближенное решение для случая S поляризованного внешнего возбуждения [8].

Поскольку совокупность сфероидов представляет собой осесимметричную конфигурацию и внешнее возбуждение (4) и приближенное решение (5) представлены разложением по азимутальной переменной φ , то определение неизвестных амплитуд ДИ $\{p_{mn}^{e,i}, q_{mn}^{e,i}, r_n^{e,i}\}$ производится из граничного условия (1) последовательно для каждой гармоники Фурье m . Амплитуды ДИ определяются из требования минимизации гармоник Фурье невязки граничного условия (1) в выбранной функциональной норме. Вычислительный алгоритм представляет собой обобщенный метод коллокаций с последующим псевдорешением соответствующих переопределенных систем линейных алгебраических уравнений. Это обстоятельство позволяет вычислять приближенное решение сразу для всех углов падения волны θ_0 и обеих поляризаций P/S. Кроме того,

вычисляя значение поверхностной невязки выполнения граничных условий (1) в промежуточных точках по отношению к точкам коллокаций, мы получаем апостериорную оценку погрешности решения (5) в выбранной функциональной норме.

После того как амплитуды ДИ определены, θ , ϕ -компоненты диаграммы рассеянного поля [12] принимают следующий вид:

$$F_{\theta}^P(\theta, \varphi) = j \sum_{m=0}^M (j \sin \theta)^m \cos(m+1)\varphi \times \sum_{n=1}^{N_e^m} \{p_{mn}^e \cos \theta + q_{nm}^e\} \exp\{-jk_e \omega_n^e \cos \theta\} - j \sin \theta \sum_{n=1}^{N_e^0} r_n^e \exp\{-jk_e \omega_n^e \cos \theta\}, \quad (6)$$

$$F_{\varphi}^P(\theta, \varphi) = -j \sum_{m=0}^M (j \sin \theta)^m \sin(m+1)\varphi \times \sum_{n=1}^{N_e^m} \{p_{mn}^e + q_{nm}^e \cos \theta\} \exp\{-jk_e \omega_n^e \cos \theta\}.$$

Из выражений (6) видно, что компоненты диаграммы рассеяния представляются в виде комбинаций элементарных функций, что гарантирует их эффективное вычисление.

Обсуждение результатов

Нас будет интересовать интенсивность полного поля в начале координат между сфероидами в зависимости от различных параметров: длины волны λ , угла падения θ_0 , расстояния между сфероидами d , поляризации,

$$E^2 = \frac{|\mathbf{E}_e(0, 0, 0) + \mathbf{E}^0(0, 0, 0)|^2}{|\mathbf{E}^0(0, 0, 0)|^2}. \quad (7)$$

Кроме того, мы будем рассматривать интенсивность рассеянного поля DSC, которая на единичной сфере определяется как

$$\text{DSC}^{P,S}(\theta_0, \theta, \varphi) = |F_{\theta}^{P,S}(\theta_0, \theta, \varphi)|^2 + |F_{\varphi}^{P,S}(\theta_0, \theta, \varphi)|^2 \quad (8)$$

и сечение рассеяния (СР) — суммарная интенсивность рассеянного поля

$$\sigma^{P,S}(\theta_0) = \int_{\Omega} \text{DSC}^{P,S}(\theta_0, \theta, \varphi) d\omega; \quad (9)$$

здесь Ω — единичная сфера. Размерность интенсивности и СР — нм^2 .

На рис. 1 приведены результаты расчета интенсивности полного поля (7) посередине между двумя серебряными сфероидами (Ag) эквобъемный диаметр каждого сфероида $D = 43$ нм, отношение осей $r = 2$, расстояние между сфероидами $d = 1$ нм (в этом случае расстояние от каждого сфероиды составляет всего 0.5 нм), в зависимости от длины падающей плоской волны для различных поляризаций и углов падения. Отметим, что индексы рефракции серебра вычислялись с учетом частотной дисперсии вещества. Кроме

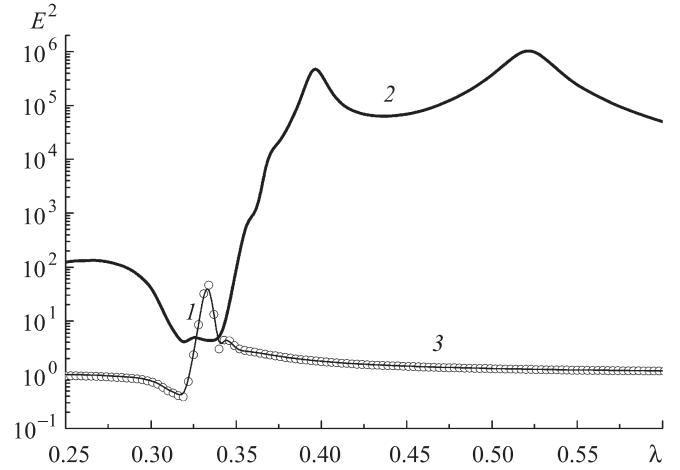


Рис. 1. Зависимость E^2 (7) от длины волны λ . Два Ag-сфероиды, $d = 1$ нм, $r = 2$. $\theta_0 = 0^\circ$, P/S соответствует кривая 1; $\theta_0 = 90^\circ$, P — кривая 2; $\theta_0 = 90^\circ$, S — кривая 3

того, необходимыми условиями ПР является выполнение следующих соотношений для индекса рефракции: $\text{Re}(n_{\text{Ag}}) \ll 1$, $\text{Re}(n_{\text{Ag}}) \ll \text{Im}(n_{\text{Ag}})$. Именно это обстоятельство достигается для благородных металлов в оптическом диапазоне длин волн [1]. Из представленных на рис. 1 результатов следует, что кривые для S-поляризованного излучения одинаковы для обоих углов падения $\theta_0 = 0^\circ$ и $\theta_0 = 90^\circ$, в то время как кривые для P-поляризации существенно отличаются. Это отличие — следствие того, что при $\theta_0 = 90^\circ$ вектор \mathbf{E}^0 параллелен оси сфероидов, а в случае S-поляризации — все время перпендикулярен плоскости падения волны. Кроме того, частотная кривая для P-поляризации имеет несколько локальных максимумов, главный из которых в области 470 нм достигает величины 10^6 . При этом поверхностная невязка граничного условия составила всего 0.02%. Это обстоятельство — центральное, определяющее погрешность полученных результатов. Отметим, что именно использованная модификация МДИ позволила уменьшить поверхностную невязку с 30 до 0.02%. Подобный результат был достигнут благодаря расположению ДИ для представления внутреннего поля в комплексной плоскости, образом которой в вещественном пространстве является плоскость симметрии сфероидов, перпендикулярная оси симметрии. Рассеянное поле строилось на основе ДИ, расположенных внутри каждого сфероиды на оси симметрии, захватывая межфокусное расстояние между сфероидами. Для характерного случая (в максимуме плазмонного резонанса, см. рис. 1) число координат источников $N_e^0 = N_i^0 = 92$, при этом число точек коллокаций на образующих сфероидов равнялось 194.

На рис. 2 приведены результаты для интенсивности поля E^2 (7) в зависимости от длины волны ($\lambda \in [0.25 \text{ мкм}, 0.60 \text{ мкм}]$) для двух Ag-сфероидов того же диаметра и вытянутости, но для различных расстояний между сфероидами. Из результатов следует, что максимумы интенсивности уменьшаются при увеличении расстояния и слегка сдвигаются влево. На рис. 3 приведены результаты расчета распределения рассеянной интенсивности (8) в плоскости падения волны для двух углов падения и обеих поляризаций.

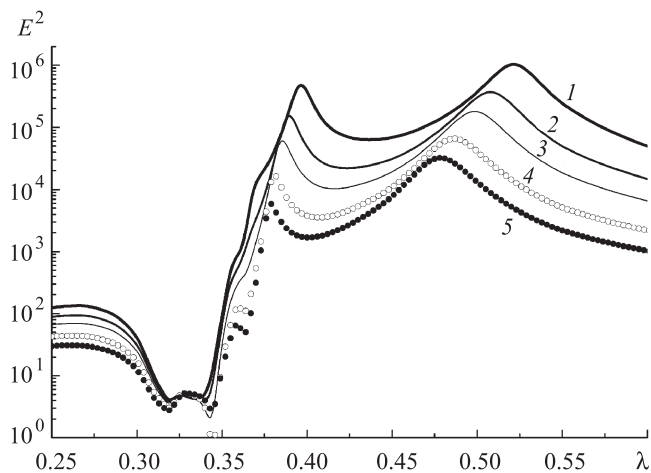


Рис. 2. Зависимость E^2 (7) от длины волны λ . $\theta_0 = 90^\circ$, P -поляризация. Расстоянию $d = 1$ нм соответствует кривая 1, $d = 1.5$ нм — кривая 2, 2 нм — кривая 3, 3 нм — кривая 4, 4 нм — кривая 5

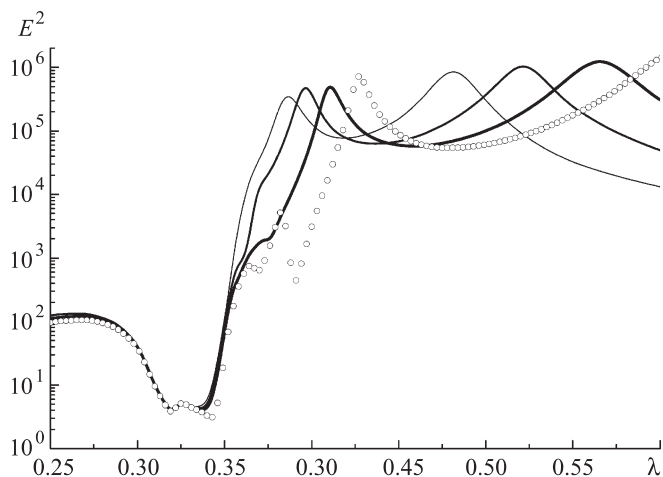


Рис. 4. Зависимость E^2 от λ . $\theta_0 = 90^\circ$, P -поляризация, $d = 1$ нм. Соотношение осей $r = 1.5$ — кривая 1, 2.0 — кривая 2, 2.5 — кривая 3, 3.0 — кривая 4

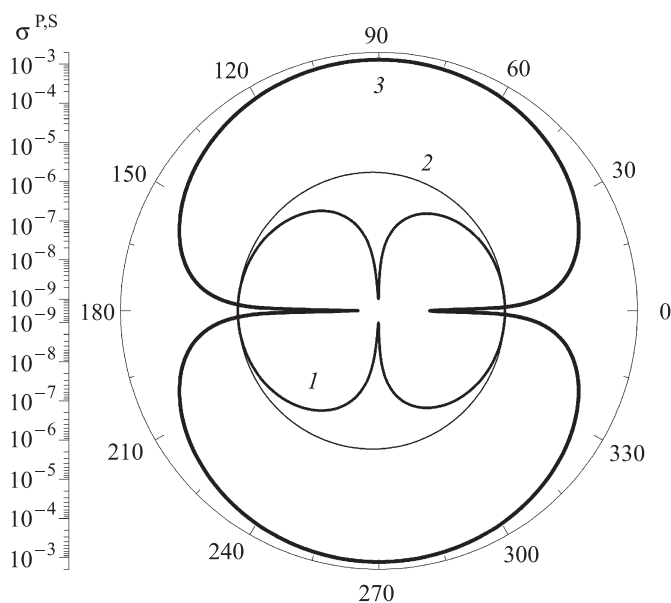


Рис. 3. DSC: (8) в плоскости падения, $d = 1$ нм, $\lambda = 520$ нм. $\theta_0 = 0^\circ$, P — кривая 1; $\theta_0 = 0^\circ$, S — кривая 2; $\theta_0 = 90^\circ$, P — кривая 3

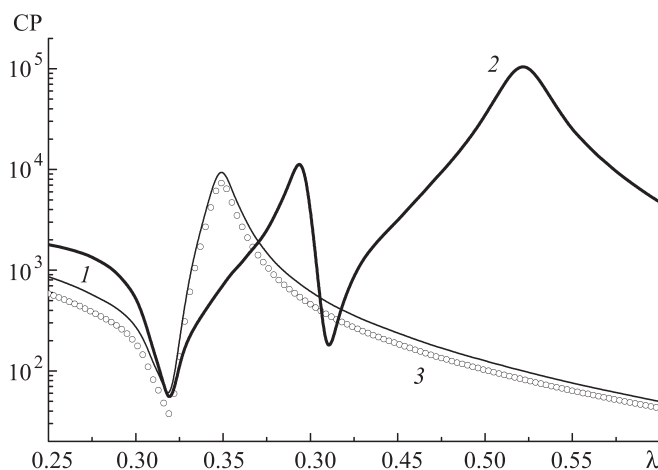


Рис. 5. Зависимость CP (9) от λ . $d = 1$ нм, $r = 2$. $\theta_0 = 0^\circ$, P/S — кривая 1; $\theta_0 = 90^\circ$, P — кривая 2; $\theta_0 = 90^\circ$, S — кривая 3

Как и ожидалось, кривые для P -поляризации существенно отличаются от кривых для S -поляризации.

На рис. 4 приведены результаты для E^2 для двух Ag-сфероидов $D = 43$ нм и $d = 1$ нм в зависимости от соотношения осей. Видно, что при увеличении вытянутости сфероидов максимумы сдвигаются в длинноволновую область спектра, оставаясь на уровне 10^6 . Кроме того, слегка возрастает число локальных максимумов.

На рис. 5 приведены результаты расчетов CP для того же случая, что и на рис. 1. Видно, что качественно кривые для E^2 и CP очень похожи. Вместе с тем следует отметить, что интенсивность поля между сфероидами существенно выше, чем величина CP. При изменении угла падения E^2 возрастает на шесть порядков в максимуме ПР, в то время как CP — только на четыре.

Отметим, что в процессе моделирования полученные численные результаты для CP сравнивались с результатами, полученными в квазистатическом приближении [13]. При этом наблюдалось хорошее совпадение при согласовании входных параметров.

Заключение

Выполнена модификация МДИ, позволившая проводить детальный анализ ПР двух вытянутых серебряных сфероидов. Установлено наличие ПР в частотной области как для интенсивности поля, так и для CP поляризованного светового излучения. Показано, что усиление интенсивности электрического поля достигается только при P -поляризованном возбуждении и может составлять 10^6 в пике плазмонного резонанса. Исследована зависимость ПР от угла падения возбуждающего света, вытянутости сфероидов и расстояния между ними.

Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ (грант 09-01-00318).

Список литературы

1. Sarid D., Challener W. Modern Introduction to Surface Plasmons. Theory, Mathematical Modeling, and Applications. Cambridge Univ. Press, 2010.
2. Климов В.В. Наноплазмоника. М., 2009.
3. Jain P.K., Huang X., El-Sayed I.H., El-Sayed M.A. // Plasmonics. 2007. **2**. P. 107.
4. Mohammadi A., Sandoghdar V., Agio M. // J. Comput. Theoretical Nanoscience. 2009. **6**. P. 2024.
5. Kern A.M., Martin O.J.F. // Nano Lett. 2011. **11**. P. 482.
6. Hafner Ch. // Phys. Stat. Sol. B. 2007. **244**, N 10. P. 3435.
7. Hohenester U., Krenn J. // Phys. Rev. 2005. **72**. P. 195429.
8. Еремин Ю.А., Свешников А.Г. // Успехи современной радиоэлектроники. 2003. № 10. С. 3.
9. Eremin Yu.A., Orlov N.V., Rozenberg V.I. // J. Atmosph. Terr. Phys. 1995. **57**, N 3. P. 311.
10. Колтон Д., Кресс Р. Методы интегральных уравнений в теории рассеяния. М., 1987.
11. Hafner Ch. Post-modern Electromagnetics. Using Intelligent Maxwell Solvers. J. Wiley & Sons, 1999.
12. Гришина Н.В., Еремин Ю.А., Свешников А.Г. // Вестн. Моск. ун-та. Физ. Астрон. 2003. № 2. С. 18.
13. Guzatov D.V., Klimov V.V. // New J. Phys. 2011. **13**. P. 053034.

Plasmonic resonances of local structures investigation based on discrete sources method

N. V. Grishina^{1,a}, Yu. A. Eremin^{2,b}, A. G. Sveshnikov¹¹Department of Mathematics, Faculty of Physics;²Department of Mathematical Physics, Faculty of Computational Mathematics and Cybernetics, M. V. Lomonosov Moscow State University, Moscow 119991, Russia.E-mail: ^a ngrishina@inbox.ru, ^b eremin@cs.msu.ru.

Modification of the Discrete Sources Method allowing to perform an effective numerical analysis of the plasmonic resonances of local structures has been proposed and realized. The numerical scheme enables to compute near field with high accuracy degree and track the plasmonic resonances which near field intensity increases in several orders.

Keywords: numerical analysis, discrete sources method, plasmonic resonance.

PACS: 42.25.-p; 42.25.Fx.

Received 1 June 2011.

English version: *Moscow University Physics Bulletin* 6(2011).

Сведения об авторах

1. Гришина Наталья Владимировна — канд. физ.-мат. наук, ст. науч. сотрудник; тел.: (495) 939-10-33, e-mail: ngrishina@inbox.ru.

2. Еремин Юрий Александрович — докт. физ.-мат. наук, ст. науч. сотрудник; тел.: (495) 939-17-76, e-mail: eremin@cs.msu.ru.

3. Свешников Алексей Георгиевич — докт. физ.-мат. наук, профессор, профессор; тел.: (495) 939-10-33, e-mail: sveshnikov@phys.msu.ru.