

НЕСТАЦИОНАРНЫЙ ОТКЛИК ПОВЕРХНОСТНОГО ПЛАЗМОНА МЕТАЛЛИЧЕСКОГО НАНОПРОВОДА НА ИЗМЕНЕНИЕ ПОКАЗАТЕЛЯ ПРЕЛОМЛЕНИЯ ВНЕШНЕГО ПРОСТРАНСТВА

Введение

Наноразмерные частицы и провода являются предметом растущего интереса ввиду возможности сильной локализации света за счет возбуждения поверхностных плазмонов [1]. Плазмонные колебания возникают на поверхности раздела металл-диэлектрик и обусловлены коллективными осцилляциями электронов. Плазмоны могут существовать только в зоне непрозрачности металлов, когда действительная часть их диэлектрической проницаемости отрицательна.

Если наночастицы (нанопровода) находятся в непосредственной близости друг от друга (образуют кластер, агрегат), их плазмонные резонансы являются комбинациями плазмонных резонансов уединенных частиц (проводов) [2 – 4]. Фундаментальные свойства наноструктур, такие как высокая чувствительность к окружающей среде (для биосенсорных применений) или улучшенная направленность излучения (для наноантенных применений), могут быть скорректированы подбором размера и положения составляющих элементов.

Использование плазмонных резонансов представляется многообещающим в плане обнаружения и диагностики рака на ранних стадиях. Наночастицы прикрепляются к поверхности раковых клеток или попадают внутрь, в то время как здоровые клетки не связываются с наночастицами. Для визуализации накопления наночастиц в злокачественных опухолях возможно использование, например, магнитно-резонансной томографии [5 – 6].

Особый интерес представляет исследование реакции биосенсора на изменение во времени показателя преломления окружающей среды, вызванного изменением концентрации биоматериала на его поверхности [7 – 8]. В данной работе рассмотрено аналитическое решение задачи преобразования поверхностного плазмона, возбужденного на границе серебряного нанопровода, в результате изменения во времени показателя преломления. В случае скачкообразного изменения показателя преломления построено аналитическое решение в виде преобразования Лапласа. Обратное преобразование во временную область осуществлялось с помощью оценки вычетов в особых точках и интегралов вдоль разрезов комплексной плоскости. Такое рассмотрение гарантирует получение результатов с контролируемой точностью, а также простоту интерпретации наблюдаемых явлений. Это отличает данный подход от прямых численных методов, которые сейчас пользуются большой популярностью, например метод конечных разностей во временной области [9 – 11], требующих огромных вычислительных затрат и испытывающих затруднения при моделировании открытых и криволинейных границ.

Постановка задачи и ее решение

Рассматривается круговой плазменный цилиндр бесконечной протяженности радиусом a , который является моделью металлического нанопровода. Цилиндр ориентирован вдоль оси Oz , в поперечном сечении цилиндра введены полярные координаты (ρ, φ) . На поверхности металлического провода плазмонные резонансы возможны только в случае перпендикулярной поляризации. Зависящая от частоты диэлектрическая проницаемость описывается моделью Друде

$$\varepsilon_p(\omega) = \varepsilon_\infty - \frac{\omega_p^2}{\omega(\omega - i\gamma)}, \quad (1)$$

где ω_p – плазменная частота, γ – затухание. Нанопровод расположен в недиспергирующем диэлектрике с показателем преломления n_1 . Предположим, что на поверхности данного нанопровода возбужден поверхностный плазмон. Обозначим через h_0 z – координату его магнитного поля, которую можно представить в виде [12]:

$$h_0 = H_0 \begin{cases} b_k J_k(n_p k_0 \rho) \cos k\varphi \cdot e^{-i\omega t^*}, & \rho < a, \\ H_k^{(2)}(n_1 k_0 \rho) \cos k\varphi \cdot e^{-i\omega t^*}, & \rho > a, \end{cases} \quad (2)$$

Здесь величина $e^{-i\omega_0 t^*}$ символизирует тот факт, что плазмон образовался в момент времени $t^* < 0$, зависимость от времени предполагается равной $e^{i\omega_0 t}$, $k_0 = \omega_0/c$ – волновое число, $n_p = \sqrt{\varepsilon_p}$, ω_0 – решение дисперсионного уравнения

$$n_p J_k(n_p k_0 a) H_k^{(2)}(n_1 k_0 a) - n_1 J_k'(n_p k_0 a) H_k^{(2)}(n_1 k_0 a) = 0, \quad (3)$$

коэффициент b_k

$$b_k = \frac{H_k^{(2)}(n_1 k_0 a)}{J_k(n_p k_0 a)}. \quad (4)$$

Предположим, что показатель преломления среды изменяется от значения n_1 до значения n_2 в некоторый фиксированный момент времени, который, не уменьшая общности, можно считать нулевым (см. рис. 1).

Сначала получим нестационарные уравнения для электромагнитного поля в плазме с поглощением (1). Уравнения Максвелла для немагнитных сред имеют вид:

$$\nabla \times \mathbf{h}(\mathbf{r}, t) = \frac{\partial}{\partial t} \mathbf{d}(\mathbf{r}, t), \quad (5)$$

$$\nabla \times \mathbf{e}(\mathbf{r}, t) = -\frac{\partial}{\partial t} \mathbf{b}(\mathbf{r}, t). \quad (6)$$

Здесь $\mathbf{d}(\mathbf{r}, t) = \varepsilon_0 \varepsilon(t) \mathbf{e}(\mathbf{r}, t)$, $\mathbf{b}(\mathbf{r}, t) = \mu_0 \mathbf{h}(\mathbf{r}, t)$, \mathbf{e} – вектор напряженности электрического поля, \mathbf{h} – вектор напряженности магнитного поля, ε_0 и μ_0 электрическая и магнитная постоянные, символ радиус-вектора \mathbf{r} означает зависимость от пространственных координат, а t от времени.

Запишем (1) в следующей форме:

$$\varepsilon_p(\omega) = \varepsilon_\infty + \chi(\omega), \quad \chi(\omega) = -\frac{\omega_p^2}{\omega(\omega - i\gamma)}. \quad (7)$$

Восприимчивость среды во временной области находим с помощью обратного преобразования Фурье

$$\chi(t) = -\frac{\omega_p^2}{\gamma} (1 - e^{-\gamma t}) \Theta(t). \quad (8)$$

Вектор электрической индукции имеет вид

$$\vec{d}(t) = \varepsilon_0 \vec{e}(t) + \varepsilon_0 \int_0^t \chi(t-t') \vec{e}(t') dt', \quad (9)$$

или, после подстановки (7) в (9)

$$\vec{d}(t) = \varepsilon_0 \varepsilon_\infty \vec{e}(t) + \varepsilon_0 \frac{\omega_p^2}{\gamma} \int_0^t (1 - e^{-\gamma(t-t')}) \Theta(t-t') \vec{e}(t') dt'. \quad (10)$$

Далее, взяв ротор от уравнения (5) и учитывая выражение (10), получаем, что

$$\operatorname{rot} \operatorname{rot} \bar{h} + \frac{1}{c^2} \varepsilon_\infty \frac{\partial^2}{\partial t^2} \bar{h} + \frac{1}{c^2} \frac{\omega_p^2}{\gamma} \frac{\partial}{\partial t} \bar{h} - \frac{1}{c^2} \frac{\omega_p^2}{\gamma} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \int_0^t e^{-\gamma(t-t')} \bar{h}(t') dt' = 0. \quad (11)$$

С учетом того, что в данном рассмотрении ненулевой является только z -координата вектора \bar{h} (обозначим ее h), данное уравнение можно записать в виде

$$\Delta h + \frac{1}{c^2} \varepsilon_\infty \frac{\partial^2}{\partial t^2} h + \frac{1}{c^2} \frac{\omega_p^2}{\gamma} \frac{\partial}{\partial t} h - \frac{1}{c^2} \frac{\omega_p^2}{\gamma} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \int_0^t e^{-\gamma(t-t')} h(t') dt' = 0, \quad (12)$$

где $\Delta h = \left(\frac{\partial^2}{\partial \rho^2} + \frac{1}{\rho} \frac{\partial}{\partial \rho} + \frac{1}{\rho^2} \frac{\partial^2}{\partial \varphi^2} \right) h$.

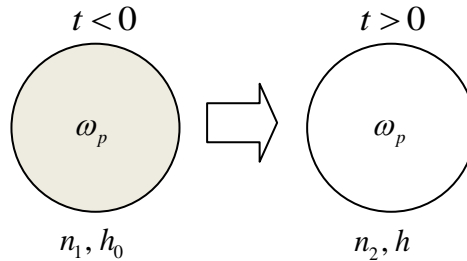


Рис. 1. Геометрия задачи

Таким образом, после нулевого момента времени преобразованное поле внутри металлического нанопровода удовлетворяет уравнению

$$\Delta h + \frac{1}{c^2} \varepsilon_\infty \frac{\partial^2}{\partial t^2} h + \frac{1}{c^2} \frac{\omega_p^2}{\gamma} \frac{\partial}{\partial t} h - \frac{1}{c^2} \frac{\omega_p^2}{\gamma} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \int_0^t e^{-\gamma(t-t')} h(t') dt' = 0, \quad \rho < a, \quad (3)$$

а снаружи

$$\Delta h - \frac{n_2^2}{c^2} \frac{\partial^2 h}{\partial t^2} = 0, \quad \rho > a. \quad (14)$$

Начальные условия в стационарной плазме имеют вид

$$h(t=0^+) = h(t=0^-), \quad \frac{\partial}{\partial t} h(t=0^+) = \frac{\partial}{\partial t} h(t=0^-), \quad (15)$$

а в нестационарном диэлектрике

$$h(t=0^+) = h(t=0^-), \quad \frac{\partial}{\partial t} h(t=0^+) = \frac{n_1^2}{n_2^2} \frac{\partial}{\partial t} h(t=0^-). \quad (16)$$

К уравнениям (13) и (14) применяем преобразование Лапласа $H(p) = \int_0^\infty h(t) e^{-pt} dt$. С учетом начальных условий (15) и (16) приходим к следующим уравнениям для функций-изображений

$$\Delta H + q^2 \left(\varepsilon_\infty + \frac{1}{c^2} \frac{\omega_p^2}{q(q+\gamma/c)} \right) H = \frac{q}{c^2} \left(\varepsilon_\infty \left(c + \frac{ik_0}{q} \right) + \frac{\omega_p^2}{\gamma q} \right) H_0 b_k J_k(n_p k_0 \rho) \cos k\varphi, \quad \rho < a, \quad (17)$$

$$\Delta H + n_2^2 q^2 H = \frac{n_2^2}{c} \left(q + ik_0 \frac{n_1^2}{n_2^2} \right) H_k^{(2)}(n_1 k_0 \rho) \cos k\varphi, \quad \rho > a. \quad (18)$$

Здесь $q = p/c$.

Решение начально-краевой задачи строится в виде суперпозиции решения начальной задачи, и слагаемых, явно учитывающих влияние границы. Исходя из начальных условий решение данной начально-краевой задачи нужно искать в виде

$$H(\rho < a) = H_0 b_k \frac{1}{q - ik_0} J_k(n_p k_0 \rho) \cos k \rho e^{-i\omega t^*} + B_k(q) I_k(\tilde{n}_p q \rho) \cos k \rho e^{-i\omega t^*}, \quad (19)$$

$$H(\rho > a) = \frac{n_2^2 q + i n_1^2 k_0}{n_2^2 q^2 + n_1^2 k_0^2} H_k^{(2)}(n_1 k_0 \rho) \cos k \rho e^{-i\omega t^*} + C_k(q) K_k(n_2 q \rho) \cos k \rho e^{-i\omega t^*}, \quad (20)$$

$$\tilde{n}_p = \sqrt{\varepsilon_\infty + \frac{1}{c^2} \frac{\omega_p^2}{q(q + \gamma/c)}}. \quad (21)$$

Здесь $I_k(\dots)$, $K_k(\dots)$ – модифицированные функции Бесселя. Первые слагаемые в (19) и (20) – это решения начальных задач, а вторые слагаемые соответствуют влиянию границы.

Неизвестные коэффициенты B_k и C_k находим из граничных условий, которые заключаются в требовании непрерывности на границе нанопровода тангенциальных компонент поля, в данном случае H_z и E_φ . Компоненту E_φ первичного и преобразованного полей выразим из уравнений Максвелла через компоненту H_z . Тогда в нашем случае граничные условия для производной от магнитного поля принимают вид

$$\begin{aligned} \frac{1}{n_p^2} \frac{\partial}{\partial \rho} H_z(-a, \varphi, \rho) - \frac{i}{\omega_0} \cdot \frac{1}{n_p^2} \frac{\partial}{\partial \rho} h_{0,z}(-a, \varphi, 0^-) = \\ = \frac{1}{n_2^2} \frac{\partial}{\partial \rho} H_z(+a, \varphi, \rho) - \frac{i}{\omega_0} \cdot \frac{1}{n_2^2} \frac{\partial}{\partial \rho} h_{0,z}(+a, \varphi, 0^-). \end{aligned} \quad (22)$$

После преобразований получим

$$B_k = \frac{n_p k_0 J_k(n_p k_0 a) K_k'(n_2 q a) + n_2 q J_k'(n_p k_0 a) K_k(n_2 q a)}{n_2 I_k'(\tilde{n}_p q a) K_k(n_2 q a) - \tilde{n}_p K_k'(n_2 q a) I_k(\tilde{n}_p q a)} \times N, \quad (23)$$

$$C_k = \frac{\tilde{n}_p q J_k'(n_p k_0 a) I_k(\tilde{n}_p q a) + n_p k_0 I_k'(\tilde{n}_p q a) J_k(n_p k_0 a)}{n_2 I_k'(\tilde{n}_p q a) K_k(n_2 q a) - \tilde{n}_p K_k'(n_2 q a) I_k(\tilde{n}_p q a)} \times N, \quad (24)$$

здесь $N = \frac{i q^3 (n_1^2 - n_2^2)}{(q^2 n_2^2 + k_0^2 n_1^2)(q - ik_0)} H_0 b_k e^{-i\omega t^*}$.

Обратное преобразование во временную область находим с помощью формулы Меллина на $h(t) = \frac{1}{2\pi i} \int_{-i\infty}^{+i\infty} H(p) e^{pt} dp$. Выражения (19) и (20) имеют особые точки $q = ik_0$, $q = \pm ik_0 n_1/n_2$, особыми точками также являются корни уравнения

$$n_2 I_k'(\tilde{n}_p q a) K_k(n_2 q a) - \tilde{n}_p K_k'(n_2 q a) I_k(\tilde{n}_p q a) = 0 \quad (k = 0, 1, 2, \dots). \quad (25)$$

Нули (25) определяют собственные частоты плазменного нанопровода. Асимптотические оценки при больших значениях переменной q слагаемых в (19) и (20), соответствующих влиянию границы, имеют следующий вид:

$$B_k I_k(\tilde{n}_p q \rho) \square \frac{H_0}{c} \cdot \frac{n_2 - \tilde{n}_p}{\tilde{n}_p} b_k J_k'(n_2 q a) \sqrt{\frac{a}{\rho}} e^{\sqrt{\varepsilon_\infty} q(\rho - a)}, \quad (26)$$

$$C_k K_k(n_2 q \rho) \square \frac{H_0}{c} \cdot \frac{n_2 - \tilde{n}_p}{\tilde{n}_p} b_k J_k'(n_2 q a) \sqrt{\frac{a}{\rho}} e^{n_2 q(a - \rho)}. \quad (27)$$

Таким образом, данные слагаемые при обращении во временную область демонстрируют временное запаздывание, а именно: сразу после скачка показателя преломления внешнего пространства от значения n_1 до значения n_2 в нестационарной среде ($\rho > a$) поле описывается первым слагаемым в (20), при этом изменяется частота первичного поля. Внутри металлического нанопровода ($\rho < a$) присутствует только первичное поле. Из асимптотических

представлений (26) – (27) следует, что на границе формируются нестационарные волны, которые распространяются в противоположных от нее направлениях. После прохождения волнового фронта через точку наблюдения полное поле описывается суммой вычетов во всех особых точках и интегралами вдоль разрезов комплексной плоскости p .

Численные результаты

Для численного моделирования рассматривались такие нормированные параметры модели Друде: $w_p = \omega_p a c^{-1} = 0.7$, $\gamma = 10^{-2} w_p$, $\varepsilon_\infty = 1$, которые в оптическом диапазоне соответствуют параметрам серебряного нанопровода радиуса $a = 39.1$ нм [13]. Предполагается, что нанопровод погружен в недиспергирующий диэлектрик с показателем преломления $n_1 = 1.45$. Собственную частоту дипольного плазмона ($k = 1$) данного нанопровода находим из уравнения (3): $w_0 = \omega_0 a c^{-1} = 0.56792 + 0.03414i$. Выражения для поля данного плазмона представлены формулой (2), а его пространственное распределение представлено на вставке рис. 5. После изменения показателя преломления от значения n_1 до значения n_2 первичное поле преобразуется и описывается формулами (19) – (20). Контур интегрирования комплексной плоскости p при обращении во временную область показан на рис. 2 (на вставках цифрами указаны номера разрезов, вдоль которых вычислялись интегралы). Рассматриваемые выражения имеют три точки ветвления: две точки ветвления соответствуют значениям $\tilde{n}_p = 0$ ($p a c^{-1} = -0.0035 + 0.69999i$, $p a c^{-1} = -0.0035 - 0.69999i$), также точкой ветвления является значение $p = 0$. Особые точки $q = ik_0$, $q = \pm ik_0 n_1/n_2$ выражений (19) – (20) являются устранимыми особенностями.

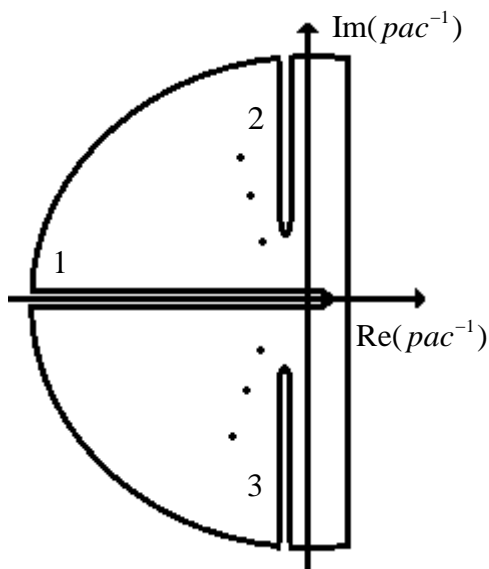


Рис. 2. Контур интегрирования при вычислении интеграла Меллина

Ненулевой вклад дают только особые точки, отвечающие корням уравнения (25) и соответствующие собственным частотам нанопровода. Они являются простыми полюсами данных выражений. Все эти частоты являются комплексными величинами, мнимая часть которых определяет скорость затухания колебаний. Уравнение (25) имеет один корень, который соответствует поверхностному плазмону на границе металл-диэлектрик с показателем преломления n_2 , а также бесконечное число особых точек, соответствующих объемным плазмонам. Используя полученные выше аналитические решения, можно оценить вклад каждой возбужденной резонансной частоты в полное поле. Для этого приведем значения вычетов отдельно в нескольких особых точках ($n_2 = 1.452$). Особыми точками являются собственные частоты, соответствующие поверхностному плазмону

$\tilde{\omega}_0 a c^{-1} = \pm 0.56771 + 0.03421i$, вычеты в каждой из этих частот равны $-0.99998 - 0.77466i$ для (+) и $-0.00196 + 0.00112i$ для (-). Величины нормированы амплитудой первичного поля. Частота $\omega_1 a c^{-1} = \pm 3.42535 + 0.18366i$ соответствует объемному плазмону с одной вариацией вдоль радиуса, а вычеты соответственно равны $-0.00628 - 0.00301i$ для (+) и $0.00448 - 0.00232i$ для (-). Следующий объемный плазмон с двумя вариациями вдоль радиуса имеет нормированную частоту $\omega_2 a c^{-1} = \pm 6.78268 + 0.05189i$, а вычеты в ней соответственно равны $0.00218 + 0.00357i$ для (+) и $-0.00185 + 0.00344i$ для (-). Очевидно, что амплитуды возбуждаемых объемных плазмонов пренебрежимо малы,

по сравнению с амплитудой возбуждаемого поверхностного плазмона. Аналогичная ситуация будет наблюдаться для объемных плазмонов с высшими радиальными номерами.

На рис. 3 показана временная динамика преобразования магнитного поля внутри серебряного нанопровода. Рассматривается нормированное время $T = tca^{-1}$.

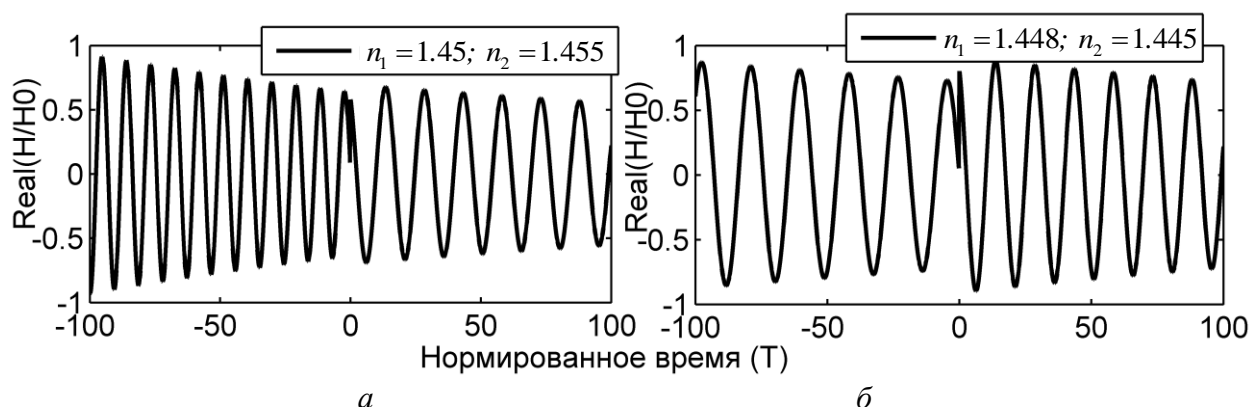


Рис. 3. Преобразование магнитного поля в результате скачка коэффициента преломления: $a - n_1 = 1.45, n_2 = 1.455$; $b - n_1 = 1.448, n_2 = 1.445$ (точка наблюдения $\rho/a = 0.9, \varphi = 0$)

До нулевого момента времени график на рис. 3 соответствует первичному полю (2). После нулевого момента поле во временной области рассчитывалось по формуле (19).

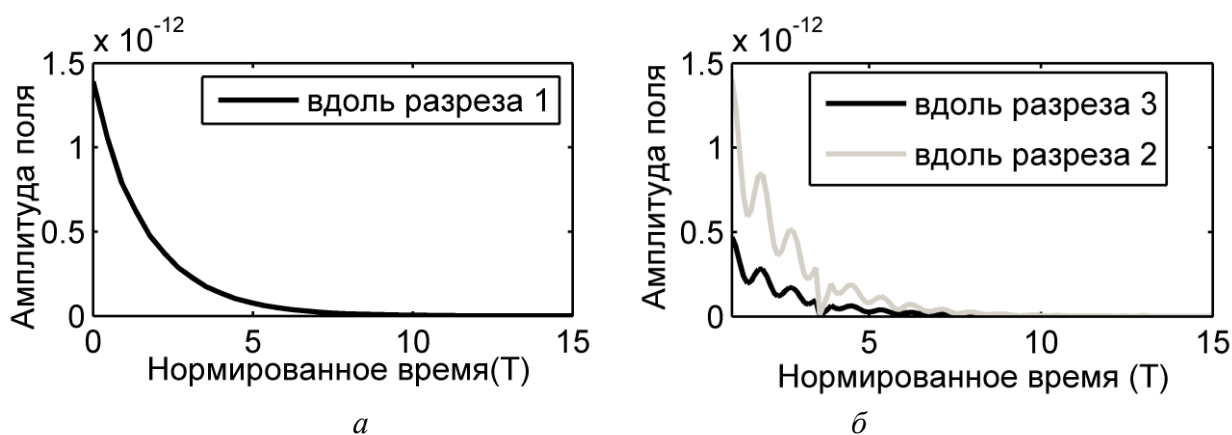


Рис. 4. Вклад интегралов вдоль разрезов комплексной плоскости ($n_1 = 1.45, n_2 = 1.452$). Точки ветвления: $a - p = 0$; $b - pac^{-1} = -0.0035 + 0.69999i, pac^{-1} = -0.0035 - 0.69999i$

На рис. 4 показано отдельно влияние интегралов вдоль разрезов комплексной плоскости. Оно очень мало и при вычислениях им можно пренебречь.

С учетом того, что вклад объемных плазмонов и интегралов вдоль разрезов комплексной плоскости в полное поле невелик, можно считать, что после скачка показателя преломления исходный поверхностный плазмон преобразуется в поверхностный плазмон с новым значением показателя преломления окружающей среды. При этом изменяется его частота и амплитуда. Исходя из рис. 3 можно заключить, что при увеличении показателя преломления частота плазмона уменьшается, а при уменьшении растет.

На рис. 5 показано распределение поля плазмона в ближней зоне на плоскости для разных значений показателя преломления: $n_2 = n_1 + \Delta n$ ($\Delta n = -0.005, \Delta n = 0.005$). Штриховой вертикальной линией показано границу серебряного нанопровода. Очевидно, что после скачка показателя преломления в сторону его увеличения происходит уменьшение амплитуды возбуждаемого поверхностного плазмона, и наоборот.

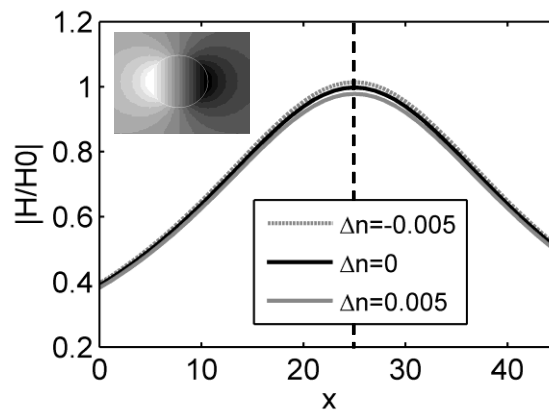


Рис. 5. Распределение магнитного поля в ближней зоне на плоскости для разных значений диэлектрической проницаемости $n_x = n_1 + \Delta n$ ($n_1 = 1.45$)

Выводы

Получено аналитическое описание временной динамики поля поверхностного плазмона серебряного нанопровода, расположенного в нестационарном диэлектрике, показатель преломления которого имеет вид ступенчатой во времени функции. Показано, что скачкообразное изменение показателя преломления ведет к смещению частоты поверхностного плазмона и сохранению пространственного распределения поля.

Список литературы: 1. Zayats A., Smolyaninov I. Near-field photonics: surface plasmon polaritons and localized surface plasmons // *Journal of Optics A: Pure and Applied Optics*. – 2003. – Vol. 5. – P. 16 – 50. 2. Nordlander P., Oubre C., Prodan E., Li K., and Stockman M. Plasmon Hybridization in Nanoparticle Dimers // *Nano Letters*. – 2004. – Vol. 4, No. 5. – P. 899 – 903. 3. Rolly B., Stout B., and Bonod N. Metallic dimers: When bonding transverse modes shine light // *Phys. Rev. B*. – 2011. – Vol. 84. – 125420. 4. Devilez A., Stout B., and Bonod N. Mode-balancing far-field control of light localization in nanoantennas // *Phys. Rev. B*. – 2010. – Vol. 81. – 245128. 5. Blanco E., Kessinger C.W., Sumer B. D., Gao J. Multifunctional Micellar Nanomedicine for Cancer Therapy // *Experimental Biology and Medicine*. – 2009. – Vol. 234, No. 2. – P. 123-131. 6. Sumer B., Gao J. Theranostic nanomedicine for cancer // *Nanomedicine*. – 2008. – Vol. 3, No. 2. – P. 137 – 140. 7. Yogeswaran U. and Chen S. – M. A Review on the Electrochemical Sensors and Biosensors Composed of Nanowires as Sensing Material // *Sensors* 8. – 2008. – P. 290 – 313. 8. Byun K.M., Yoon S.J., Kim D., and Kim S.J. Experimental study of sensitivity enhancement in surface plasmon resonance biosensors by use of periodic metallic nanowires // *Optics Letters*. – 2007. – Vol. 32, No. 13. – P. 1902 – 1904. 9. Yee K. S. Numerical solution of initial boundary value properties, involving Maxwell's equations in isotropic media // *IEEE Trans. on Antennas and Propagation*. – 1966. – Vol. 14, No. 3. – P. 302 – 307. 10. Shlager K.L. and Schneider J.B. A selective survey of the finite-difference time-domain literature // *IEEE Antennas Propag. Mag.* – 1995. – Vol. 37, No 4. – P. 39 – 57. 11. Taflove A. and Hagness S.C. Computational Electrodynamics: The Finite-Difference Time-Domain Method // 2005. 3rd ed. Artech House. 12. Стогний Н.П., Сахненко Н.К. Плазмонные резонансы в изолированном и паре связанных плазменных цилиндров // *Вестник ХНУ им. В.Н. Каразина. Сер. «Радиофизика и электроника»*. – 2011. № 983. – Вып. 19. – С. 84 – 90. 13. Jonson P. and Christy R. Optical constants of the noble metals // *Phys. Rev. B*. – 1972. – Vol. 6. – P. 4370-4379.

Харьковский национальный
университет радиоэлектроники

Поступила в редколлегию 15.11.2013