19

Анализ влияния нелокальности на характеристики ближнего поля слоистой частицы на подложке

© Ю.А. Еремин

Московский государственный университет им. М.В. Ломоносова,
119991 Москва, Россия

e-mail: eremin@cs.msu.ru

Поступила в редакцию 28.04.2020 г.
В окончательной редакции 28.04.2020 г.
Принята к публикации 29.05.2020 г.

Рассмотрена задача дифракции поля электромагнитной плоской волны на слоистой наночастице с металлическим плазмонным слоем, расположенной на поверхности прозрачной подложки. На основе метода дискретных источников исследовано влияния пространственной нелокальности в металле на интенсивность ближнего поля и сечение поглощения. Рассмотрены случаи возбуждения частицы как распространяющейся, так и неизлучающей волной. Показано, что подложка оказывает более существенное влияние на оптические характеристики ближнего поля, чем на интенсивность в дальней зоне. Установлено, что учет эффекта нелокальности в металле приводит к существенному снижению амплитуды плазмонного резонанса при небольшом сдвиге в коротковолновую область.

Ключевые слова: метод дискретных источников, плазмонный резонанс, слоистая наночастица.

DOI: 10.21883/OS.2020.09.49881.141-20

Введение

Квантовая наноплазмоника привлекает все больший интерес у исследователей во многих странах. Как известно, поверхностные плазмоны позволяют концентрировать электромагнитные поля в субнанометровых объемах, значительно превышая классический предел оптической дифракции. Эта область плазмоники интенсивно развивается благодаря совершенствованию технологий синтеза наноразмерных структур, которые ведут к миниатюризации элементов фотонных схем. Последнее обстоятельство создает условия для их использования в многочисленных практических приложениях [1].

За последние десятилетия использование слоистых наночастиц приобрело огромную популярность благодаря возможности манипулирования материалами и размерами как ядра, так оболочки для управления их плазмонными свойствами. Это обстоятельство выгодно отличает их от однородных частиц. Благодаря впечатляющему прогрессу в материаловедении слоистые наночастицы теперь могут быть синтезированы с улучшенными физико-химическими свойствами, четко определенными размерами, формой и составом [2]. Используя их способность в сверхвысоком усилении поля и концентрации субволнового поля, стало возможным широкое разнообразие применений во многих областях промышленного, клинического, биологического, экологического и пищевого анализа [3,4]. Особый интерес в наноплазмонике вызывает проблема разработки и реализации плазмонного нанолазера. Плазмонные нанолазеры, основанные на использовании слоистых резонаторов, имеют преимущества наноразмера, низкого энергетического порога и супермалого времени отклика [5].

В целом ряде приложений, упомянутых выше, возникает необходимость в исследовании оптических свойств наночастиц, расположенных на диэлектрической подложке. В этом случае весьма важно строго учитывать взаимодействие между частицей и поверхностью подложки. Эти обстоятельства возникают как при попытках обнаружения и определения структуры привнесенных частиц, так и решении проблем синтеза слоистых структур для получения требуемых спектральных свойств [6,7]. При сокращении размера металлических элементов до десятка нанометров электрон-электронные взаимодействия в наноструктурах должны учитываться на другом уровне. Дело в том, что когда характерный размер металлических наночастиц становится сравнимым с длиной волны Ферми электронов в этом металле ($\sim 5\,\mathrm{nm}$ для золота и серебра), возникает так называемая пространственная нелокальность металла. В этом случае классической системы уравнений Максвелла оказывается недостаточно для точного описания электромагнитных свойств плазмонного металла [1].

Существуют различные подходы к описанию возникающего эффекта нелокальности (ЭН), начиная с полной квантово-механической модели, в рамках которой моделируется поведение каждого электрона наноструктуры на основе уравнения Шредингера. Она хорошо подходит для объяснения экспериментальных результатов, но применима лишь к плазмонным частицам диаметром всего в несколько нанометров [8]. В настоящее время при исследовании наночастиц используются подходы, которые учитывают возникающие квантовые эффекты, но позволяют описать их в рамках электромагнитной теории Максвелла. Одним из таких полуклассических подходов, учитывающих ЭН в металлах, является гидродинамическая модель Друде [9,10]. Она позволяет учитывать возникающие в металле продольные поля, но требует корректировки квантовых параметров металла при рассмотрении однородных частиц, форма которых отличается от сферической [11]. Следующая модель, свободная от этого ограничения, получила название обобщенного нелокального оптического отклика (ОНО) [12]. В рамках ОНО учитывается диффузия электронов в металле в рамках гидродинамической теории. Это обстоятельство дает возможность исследовать как однородные несферические частицы, так и их кластеры. Модель ОНО оказалась подходящим инструментом также для исследования оптических свойств сферических слоистых частиц в свободном пространстве [13]. Теория ОНО позволяет учитывать как возникающие внутри металла продольные поля, так и дополнительные граничные условия на границах раздела между металлом и диэлектриком [14].

Мы используем модель ОНО в рамках метода дискретных источников (МДИ) [15]. Метод дискретных источников — строгий численно-аналитический поверхностно ориентированный метод. Он основан на представлении полей в виде конечной линейной комбинации распределенных мультиполей низшего порядка [16], удовлетворяющих полуклассическим уравнениям Максвелла, включая продольные поля, внутри металлической оболочки. Для представления рассеянных полей вне частицы используется тензор Грина полупространства [17]. Таким образом, представления полей во всех областях удовлетворяют уравнениям Максвелла, условиям бесконечности и условиям сопряжения на бесконечной поверхности призмы. Соответствующие амплитуды дискретных источников определяются из условий сопряжения, поставленных на поверхностях слоистой частицы, включая дополнительные граничные условия. Исключительная особенность МДИ состоит в том, что он позволяет оценить реальную погрешность полученного решения посредством вычисления невязки полей на поверхностях слоев. Данное обстоятельство дает возможность вычислять ближние поля с гарантированной точностью, что особенно существенно при анализе усиления интенсивности вблизи частицы или сечения поглощения. Все эти моменты позволили использовать МДИ для анализа плазмонных наноструктур с учетом эффекта нелокальности в рамках модели ОНО [18,19].

Постановка граничной задачи дифракции, модель ОНО

Пусть все пространство $\Re^3$ разделено на два полупространства: вмещающая среда — $D_0 : (z > 0)$ и диэлектрическая подложка — $D_1 : (z < 0)$. Обозначим $\Sigma : (z = 0)$ плоскую границу раздела. Пусть сферическая слоистая частица целиком располагается в верхнем полупространстве D_0. Внутреннее диэлектрическое ядро частицы будем обозначать как D_i, а область металлической оболочки — как D_s. Соответствующие сферические поверхности обозначим как $\partial D_{i,s}$. Все среды предполагаются немагнитными, а их диэлектрические проницаемости обозначим ε_ν, $\nu = 0, 1, i, s$.

Суть ЭН заключается в том, что связь между смещением $\mathbf{D}(M)$ и напряженностью электрического поля $\mathbf{E}(M)$ становится нелокальной, т.е. соотношение $\mathbf{D}(M) = \varepsilon(M)\mathbf{E}(M)$ заменяется на

$$\mathbf{D}(M) = \int \varepsilon(M - M')\mathbf{E}(M')dM',$$

которое переходит в локальное в случае $\varepsilon(M - M') = \delta(M - M')$ [14]. Одним из проявлений ЭН является появление внутри металла продольных электромагнитных полей. В этом случае внутреннее электрическое поле $\mathbf{E}$ перестает быть чисто поперечным $(\mathrm{div}\mathbf{E}^T = 0)$ за счет формирования объемного заряда, и для адекватного описания происходящих процессов возникает необходимость привлечение дополнительно продольных полей $(\mathrm{rot}\mathbf{E}^L = 0)$ [20]. Для учета нелокальности используется гидродинамическая теория Друде и ее обобщение — модель ОНО [12]. В рамках теории ОНО проводится обобщение закона Ома для тока проводимости внутри металла, т.е. осуществляется переход следующего вида:

$$\mathbf{J} = \sigma\mathbf{E} \Rightarrow \xi^2 \mathrm{grad}(\mathrm{div}\,\mathbf{J}) + \mathbf{J} = \sigma\mathbf{E}, \tag{1}$$

где σ — проводимость металла, ξ — параметр нелокальности [14]. В результате изменяется соответствующее уравнение системы Максвелла для магнитного поля. В силу изложенных обстоятельств внутри плазмонного металла происходит расщепление электрического поля на поперечное и продольное: $\mathbf{E}_s = \mathbf{E}_s^T + \mathbf{E}_s^L$, $\mathrm{div}\,\mathbf{E}_s^T = 0$, $\mathrm{rot}\,\mathbf{E}_s^L = 0$. Можно показать [21], что эти поля внутри оболочки D_s удовлетворяют уравнениям Гельмгольца:

$$\Delta\mathbf{E}^T(M) + k_T^2\mathbf{E}^T(M) = 0, \tag{2}$$

$$\Delta\mathbf{E}^L(M) + k_L^2\mathbf{E}^L(M) = 0. \tag{3}$$

Здесь $k_T^2 = k^2\varepsilon_s$, $k_L^2 = \varepsilon_s/\xi$ — поперечное и продольное волновые числа.

Перейдем к формулировке математической постановки граничной задачи рассеяния для системы Максвелла с учетом ОНО. Обозначим $\{\mathbf{E}^0, \mathbf{H}^0\}$ поле плоской электромагнитной волны линейной поляризации, распространяющейся из верхнего полупространства в полуплоскости $\varphi = \pi$ под углом $\pi - \theta_0$ относительно нормали к подложке, совпадающей с осью $0z$. Тогда постановка граничной задачи рассеяния с учетом ЭН может быть записана в следующем виде:

$$\mathrm{rot}\,\mathbf{H}_\xi = jk\varepsilon_\xi\mathbf{E}_\xi; \mathrm{rot}\,\mathbf{E}_\xi = -jk\mathbf{H}_\xi \text{ в области } D_\xi,$$
$$\xi = 0, 1, i,$$

$$\mathrm{rot}\,\mathbf{H}_s = jk(\varepsilon_s + \xi^2\mathrm{graddiv})\mathbf{E}_s(M);\ \mathrm{rot}\mathbf{E}_s = -jk\mathbf{H}_s$$
$$\text{в области } D_s,$$

$$\mathbf{n}_i \times (\mathbf{E}_i(P) - \mathbf{E}_s(P)) = 0,$$
$$\mathbf{n}_i \times (\mathbf{H}_i(P) - \mathbf{H}_s(P)) = 0,\ P \in \partial D_i;$$
$$\varepsilon_i \mathbf{n}_i \cdot \mathbf{E}_i(P) = \varepsilon_L \mathbf{n}_i \cdot \mathbf{E}_s(P)$$
$$\left.\begin{matrix}\mathbf{e}_z \times (\mathbf{E}_0(Q) - \mathbf{E}_1(Q)) = 0,\\ \mathbf{e}_z \times (\mathbf{H}_0(Q) - \mathbf{H}_1(Q)) = 0,\end{matrix}\right. Q \in \Sigma.$$
$$\mathbf{n}_l \times (\mathbf{E}_s(P) - \mathbf{E}_0^s(P)) = \mathbf{n}_s \times \mathbf{E}_0^0(P),$$
$$\mathbf{n}_l \times (\mathbf{H}_s(P) - \mathbf{H}_0^s(P)) = \mathbf{n}_s \times \mathbf{H}_0^0(P),\ P \in \partial D_s;$$
$$\varepsilon_L \mathbf{n}_s \cdot \mathbf{E}_s(P) = \varepsilon_0 \mathbf{n}_s \cdot (\mathbf{E}_0^0(P) + \mathbf{E}_0^s(P))$$
$$\lim_{r\to\infty} r \cdot \left(\mathbf{H}_0^s \times \frac{\mathbf{r}}{r} - \sqrt{\varepsilon_0}\mathbf{E}_0^s\right) = 0,$$
$$r = |M| \to \infty,\ \xi = 0, 1,\ z \neq 0;$$
$$\max(|\mathbf{H}_0^s|, |\mathbf{E}_0^s|) = O(\rho^{-1/2}),\ \rho = \sqrt{x^2 + y^2},$$
$$\rho \to \infty,\ z = \pm 0. \qquad (4)$$

Здесь $\{\mathbf{E}_\xi, \mathbf{H}_\xi\}$ — полные поля в пространстве D_ξ, $\xi = 0, 1, i, s$ соответственно, $\mathbf{n}_{i,s}$ — единичные нормали к поверхностям ∂D_{is}, $\mathbf{e}_z$ — нормаль в поверхности подложки, $k = \omega/c$, характеристики среды выбраны таким образом, что $\operatorname{Im} \varepsilon_{0,1,s} = 0$, $\operatorname{Im} \varepsilon_s \leq 0$, $\operatorname{Im} \varepsilon_L = 0$. Предполагается, что временная зависимость выбрана в виде $\exp\{j\omega t\}$.

Конкретизируем остальные величины, входящие в постановку задачи (4). Поля $\{\mathbf{E}_\xi^0, \mathbf{H}_\xi^0\}$, $\xi = 0, 1$ представляют собой результат решения задачи отражения и преломления поля плоской волны $\{\mathbf{E}^0, \mathbf{H}^0\}$ на плоскости раздела Σ полупространств $D_{0,1}$. Поле $\{\mathbf{E}_\xi^s, \mathbf{H}_\xi^s\}$, $\xi = 0, 1$ есть рассеянное поле в каждом из полупространств, которое определяется, как $\mathbf{E}_\xi^s = \mathbf{E}_\xi - \mathbf{E}_\xi^0$, $\mathbf{H}_\xi^s = \mathbf{H}_\xi - \mathbf{H}_\xi^0$, $\xi = 0, 1$. В силу построения поля внешнего возбуждения и граничных условий на Σ рассеянное поле $\{\mathbf{E}_\xi^s, \mathbf{H}_\xi^s\}$, $\xi = 0, 1$ также должно удовлетворять условиям сопряжения для тангенциальных компонент на бесконечной границе Σ.

На поверхностях $\partial D_{i,s}$ в дополнение к классическим условиям сопряжения поставлены дополнительные условия для нормальных компонент полей, необходимые для однозначной разрешимости задачи. Эти условия физически соответствуют условиям обращения в нуль нормальной компоненты тока проводимости на границах раздела металл–диэлектрик $\mathbf{n} \cdot \mathbf{J} = 0$, которые затем трансформируются в условия для нормальных компонент полей [14]. Причем последние отличаются от стандартных условий сопряжения для нормальных компонент смещения $\mathbf{D}$, которые являются следствием непрерывности тангенциальных компонент полей в классической постановке. Из формулировки задачи (4) непосредственно вытекает, что продольная компонента поля, во-первых, локализована строго внутри слоя, и во-вторых, не вносит вклад в магнитное поле $\mathbf{H}_s$, так как $\operatorname{rot}(\operatorname{grad}\Psi) \equiv 0$. Условия излучения задачи (4) сформулированы таким образом, чтобы обеспечить обращение в нуль потока энергии на бесконечности для однородной задачи (4) [22]. Мы будем полагать, что поставленная граничная задача (4) имеет единственное классическое решение. Параметры ξ и ε_L, относящиеся к продольному полю $\mathbf{E}_s^L$, определяются следующим образом:

$$\varepsilon_L = \varepsilon_s - \omega_p^2/(j\gamma\omega - \omega^2),$$
$$\xi^2 = \varepsilon_s(\beta^2 + D(\gamma + j\omega))/(\omega^2 - j\gamma\omega).$$

Здесь ω_p — плазменная частота металла, γ — коэффициент затухания, β — гидродинамическая скорость в плазме, связанная со скоростью Ферми ν_F соотношением $\beta^2 = 3/5\nu_F^2$, D — коэффициент диффузии электронов [12].

Метод дискретных источников с учетом модели ОНО

Будем строить приближенное решение задачи (4), руководствуясь схемой [17]. Ограничимся случаем P-поляризации, поскольку именно она реализует наибольшую амплитуду плазмонного резонанса [23]. Так как частица целиком располагается в верхнем полупространстве D_0, то суммарное поле падающей и отраженной волн $\{\mathbf{E}_0^0, \mathbf{H}_0^0\}$ приобретает вид

$$\mathbf{E}_0^0 = \mathbf{E}_0^- + \mathbf{R}_p \cdot \mathbf{E}_0^+; \mathbf{H}_0^0 = \mathbf{H}_0^- + \mathbf{R}_p \cdot \mathbf{H}_0^+. \qquad (5)$$

Здесь $\{\mathbf{E}_0^- \mathbf{H}_0^-\} = \mathbf{E}^0\mathbf{H}^0$, $\mathbf{E}_0^\pm = \mathbf{e}_0^\pm \psi_0^\pm$; $\mathbf{H}_0^\pm = -\mathbf{e}_y n_0 \psi_0^\pm$, $n_0 = \sqrt{\varepsilon_0}$, R_P — коэффициент отражения Френеля [24],

$$\psi_0^\pm = \exp\{-jk_0(x \sin\theta_0 \pm z \cos\theta_0)\},$$
$$\mathbf{e}_0^\pm = (\mp \mathbf{e}_x \cos\theta_0 + \mathbf{e}_z \sin\theta_0),$$

где $\mathbf{e}_x$, $\mathbf{e}_y$,$\mathbf{e}_z$ — единичные векторы декартовой системы координат.

Построим приближенное решение задачи (4) для рассеянного поля в D_0 с учетом осевой симметрии и поляризации, удовлетворяя квазиклассической системе уравнений Максвелла во всех областях постоянства параметров среды, условиям излучения и условиям сопряжения для полей на Σ. В основу представления для рассеянного поля положим фурье-компоненты тензора Грина полупространства, которые могут быть записаны в виде интегральных представлений Вейля–Зоммерфельда [17]:

$$G_m^{e,h}(\eta, z_n) = \int_0^\infty J_m(\lambda\rho)\nu_{11}^{e,h}(\lambda, z, z_n)\lambda^{1+m} d\lambda,$$
$$g_m^{(e,h)}(\eta, z_n) = \int_0^\infty J_m(\lambda, \rho)\nu_{31}^{e,h}(\lambda, z, z_n)\lambda^{1+m} d\lambda. \qquad (6)$$

Здесь $J_m(.)$ — цилиндрическая функция Бесселя, точка $\eta = (\rho, z)$ располагается в полуплоскости $\varphi = \text{const}$, а точки локализации мультиполей распределены вдоль оси симметрии $z_n \in OZ$ строго внутри $D_i \cup D_s$. Спектральные функции электрического и магнитного типов $\nu_{11}^{e,h}$,

$\nu_{31}^{e,h}$ обеспечивают выполнение условий сопряжения на границе интерфейса $z=0$. В данном случае для них справедливы следующие выражения:

$$\nu_{11}^{e,h}(\lambda,z,z_n)=\frac{\exp\{-\eta_0|z-z_n|\}}{\eta_0}+A_{11}^{e,h}(\lambda)\exp\{-\eta_0(z+z_n)\},\ z_n>0,\ z\geq 0;$$

$$\nu_{31}^{e,h}(\lambda,z,z_n)=A_{31}^{e,h}(\lambda)\exp\{-\eta_0(z+z_n)\},\quad z_n>0,\ z\geq 0.$$

Спектральные коэффициенты A, B определяются из одномерной задачи с условиями сопряжения при $z=0$, откуда легко получается, что

$$A_{11}^{e,h}(\lambda)=\frac{\chi_0^{e,h}-\chi_1^{e,h}}{\chi_0^{e,h}+\chi_1^{e,h}}\frac{1}{\eta_0},\ A_{31}^{e,h}(\lambda)=\frac{2\delta}{(\chi_0^e+\chi_1^e)(\chi_0^h+\chi_1^h)},$$

где $\eta_\xi=\sqrt{\lambda^2-k_\xi^2}$, $\chi_\xi^e=\eta_\xi$, $\chi_\xi^h=\eta_\xi/\varepsilon_\xi$, $\delta=1/\varepsilon_0-1/\varepsilon_1$, $\xi=0,1$.

Для построения приближенного решения для рассеянного поля в пространстве D_0 используются векторные потенциалы, которые в цилиндрической системе координат могут быть записаны как

$$\mathbf{A}_{mn}^{(e)0}=\{G_m^e(\eta,z_n^e)\cos(m+1)\varphi;$$
$$-G_m^e(\eta,z_n^e)\sin(m+1)\varphi;-g_m^e(\eta,z_n^e)\cos(m+1)\varphi\},$$
$$\mathbf{A}_{mn}^{(h)0}=\{G_m^h(\eta,z_n^e)\sin(m+1)\varphi;$$
$$G_m^h(\eta,z_n^e)\cos(m+1)\varphi;-g_{m+1}^h(\eta,z_n^e)\sin(m+1)\varphi\},$$
$$\mathbf{A}_{0n}^{(e)0}=\{0;0;G_0^h(\eta,z_n^e)\}. \tag{7}$$

Для построения полей внутри областей $D_{i,s}$ будут использоваться следующие потенциалы:

$$\mathbf{A}_{mn}^{(e)\nu}=\{Y_m^\nu(\eta,z_n^\nu)\cos(m+1)\varphi;$$
$$-Y_m^\nu(\eta,z_n^\nu)\sin(m+1)\varphi;0\},\ \nu=i,s\pm;$$
$$\mathbf{A}_{mn}^{(h)\nu}=\{Y_m^\nu(\eta,z_n^\nu)\sin(m+1)\varphi;$$
$$-Y_m^\nu(\eta,z_n^\nu)\cos(m+1)\varphi;0\},\ \mathbf{A}_n^{(e)\nu}=\{0;0;Y_0^\nu(\eta,z_n^\nu)\}. \tag{8}$$

Здесь $Y_m^i(\eta,z_n^i)=j_m(k_i r_{\eta z_n^i})(\rho/r_{\eta z_n^i})^m$, $j_m(.)$ — сферическая функция Бесселя, $Y_m^{s\pm}(\eta,z_n^s)=h_m^{(2,1)}(k_s r_{\eta z_n^s})\times$ $\times(\rho/r_{\eta z_n^s})^m$, $h_m^{(2,1)}(.)$ — сферические функция Ханкеля, соответствующие „уходящим“ и „приходящим“ волнам, $r_{\eta z_n}^2=\rho^2+(z-z_n)^2$, $\eta=(\rho,z)$, $k_{is}=k\sqrt{\varepsilon_{i,s}}$, $z_n^{i,s}$ — координаты дискретных источников (ДИ). Следует отметить, что функции, положенные в основу векторных потенциалов (7), (8), удовлетворяют уравнению Гельмгольца (2).

Для случая P-поляризации продольное поле строится на основе следующих скалярных потенциалов [18]:

$$\Psi_{mn}^{s\pm}(M)=h_{m+1}^{(2,1)}(k_L R_{\eta z_n^s})P_{m+1}^{m+1}(\cos\theta_{z_n^s})\cos(m+1)\varphi,$$
$$\Psi_n^{s\pm}(M)=h_0^{(2,1)}(k_L R_{\xi z_n^s}),$$

которые удовлетворяют уравнению Гельмгольца (3). Тогда приближенное решение для полного поля внутри частицы и рассеянного поля в пространстве D_0, соответствующее P-поляризации, принимает следующий вид:

$$\mathbf{E}_\nu^{TN}=\sum_{m=0}^{M}\sum_{n=1}^{N_\nu^m}\left\{p_{mn}^\nu\frac{j}{k\varepsilon_\nu}\operatorname{rotrot}\mathbf{A}_{mn}^{(e)\nu}+q_{mn}^\nu\frac{1}{\varepsilon_\nu}\,rot\,\mathbf{A}_{mn}^{(h)\nu}\right\}+\sum_{n=1}^{N_\nu^0}r_n^\nu\frac{j}{k\varepsilon_\nu}\operatorname{rot}\operatorname{rot}\mathbf{A}_n^{(e)\nu};$$

$$\mathbf{E}_{s\pm}^{LN}=\sum_{m=0}^{M}\sum_{n=1}^{N_s^m}\bar{p}_{mm}^{s\pm}\operatorname{grad}\Psi_{mn}^{s\pm}+\sum_{n=1}^{N_s^m}\bar{r}_n^{s\pm}\operatorname{grad}\Psi_n^{s\pm};\ \mathbf{H}_\nu^N=\frac{j}{k}\operatorname{rot}\mathbf{E}_\nu^N,\ \nu=0,i,s\pm. \tag{9}$$

Заметим, что внутри оболочки D_s электромагнитное поле строится как сумма „уходящих“ и „приходящих“ волн:

$$\mathbf{E}_s^N=\mathbf{E}_{s+}^{TN}+\mathbf{E}_{s-}^{TN}+\mathbf{E}_{s+}^{LN}+\mathbf{E}_{s-}^{LN},\ \operatorname{div}\mathbf{E}_{s\pm}^{TN}=0,\operatorname{rot}\mathbf{E}_{s\pm}^{LN}=0.$$

Построенные поля (9) удовлетворяют системе уравнений Максвелла граничной задачи (4) и условиям сопряжения на бесконечной поверхности подложки Σ. А неизвестные амплитуды ДИ $\{p_{mn}^\nu,q_{mn}^\nu,r_n^\nu;\bar{p}_{mn}^{s\pm},\bar{r}_n^{s\pm}\}$ определяются из условий сопряжения на поверхностях $\partial D_{i,s}$.

Численный алгоритм строится по схеме, изложенной в [17]. Используя обобщенный метод коллокаций [25], фурье-гармоники полей (9) и внешнего возбуждения сшиваются на образующих поверхностей вращения, а контроль погрешности решения осуществляется вычислением невязки в промежуточных точках. Подобный подход позволяет обеспечить устойчивость вычислительной схемы при увеличении числа точек коллокаций и ДИ. Здесь следует подчеркнуть, что основная трудность при реализации схемы с учетом ОНО заключается в существенном различии значений продольного и поперечного волновых чисел. Это отношение $|k_L/k_T|$ может доходить до двух порядков в области резонансных длин волн. Таким образом, внутри плазмонного металла оказываются два поля с совершенно различным поведением. Однако эти сложности в рамках численной схемы МДИ компенсируются выбором различного числа ДИ для представления продольного и поперечного полей.

Для вычисления характеристик рассеяния в дальней зоне нам понадобится диаграмма направленности рассеянного поля $\mathbf{F}(\theta,\varphi)$, которая определяется в верхнем полупространстве как

$$\mathbf{E}_0(\mathbf{r})/|\mathbf{E}^0(z=0)|=\frac{\exp\{-jk_0r\}}{r}\mathbf{F}(\theta,\varphi)+O(1/r^2),\quad r\to\infty,\ z>0. \tag{10}$$

Тогда (θ, φ)-компоненты диаграммы на единичной полусфере для Pполяризации принимают вид

$$F_\theta^P(\theta, \varphi) = jk_0 \sum_{m=0}^{M} \cos((m+1)\varphi)(j \sin\theta)^m$$
$$\times \sum_{n=1}^{N_0^m} \{p_{nm}^0[\overline{G}_n^e \cos\theta + jk_0 \overline{g}_n^e \sin^2\theta] + q_{nm}^0 \overline{G}_n^h\}$$
$$- j\frac{k_0}{\varepsilon_0} \sin\theta \sum_{n=1}^{N_0^0} r_n^0 \overline{G}_n^h\},$$

$$F_\varphi^P(\theta, \varphi) = -jk_0 \sum_{m=0}^{M} \sin((m=1)\varphi)(j \sin\theta)^m \sum_{n=0}^{N_0^m} \{p_{nm}^0 \overline{G}_n^e$$
$$+ q_{nm}^0[\overline{G}_n^h \cos\theta + jk_0 \overline{g}_n^h \sin^2\theta]\}, \tag{11}$$

где соответствующие спектральные функции $\overline{G}_n^{eh}$, $\overline{g}_n^h$ могут быть представлены как

$$\overline{G}_n^{e,h} = \exp\{jk_0 z_n \cos\theta\} + A_{11}^{e,h}(k_0 \sin\theta)$$
$$\times \exp\{-jk_0 \cos\theta\},\ z_n > 0;$$

$$\overline{g}_n^{e,h}(\theta) = jk_0 \cos\theta v_{31}^{e,h}(k_0 \sin\theta, z = 0, z_n).$$

Определив амплитуды ДИ для рассеянного поля, можно легко вычислить компоненты диаграммы направленности (10), (11) на единичной полусфере $\Omega^+ = \{0 \le \theta \le \pi/2; 0 \le \varphi \le 2\pi\}$, а также поле (9) в непосредственной близости от слоистой частицы.

Численные результаты

Будем рассматривать слоистую сферическую частицу с фиксированным диаметром ядра $D = 15$ nm, состоящем из SiO_2 с индексом рефракции $n_i = 1.46$ и золотой оболочкой, толщину которой обозначим как d. Пусть частица располагается на стеклянной подложке BK7 с индексом рефракции $n_1 = 1.52$ в воде с индексом $n_0 = 1.33$. В расчетах частотная дисперсия золота учитывается в соответствии с экспериментальными результатами [26].

Нас будут интересовать как интенсивность рассеяния в дальней зоне:

$$\sigma_{sc}(\theta_0, \lambda) = \int_{\Omega^+} |F_\theta^P(\theta_0, \theta, \varphi)|^2 + |F_\varphi^P(\theta_0, \theta, \varphi)|^2 d\omega, \tag{12}$$

так и характеристики поля в непосредственной близости от внешней оболочки слоя ∂D_s. А именно коэффициент усиления интенсивности поля

$$E(\theta_0, \lambda) = \int_{\partial D_s} |\mathbf{E}_0^N + \mathbf{E}_0^0|^2 d\sigma \Big/ \int_{\partial D_s} |\mathbf{E}_0^0|^2 d\sigma. \tag{13}$$

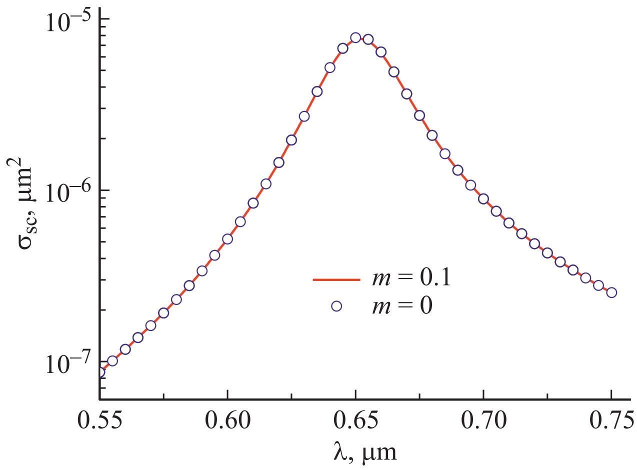

Рис. 1. Сечение рассеяния $\sigma_{sc}(\lambda)$ по формуле (12) в зависимости от длины волны λ, толщина слоя $d = 2$ nm, угол падения волны $\theta_0 = 45^\circ$. Сплошная кривая $m = 0, 1$ — учитываются диполи и квадруполи, кружки $m = 0$ — только диполи.

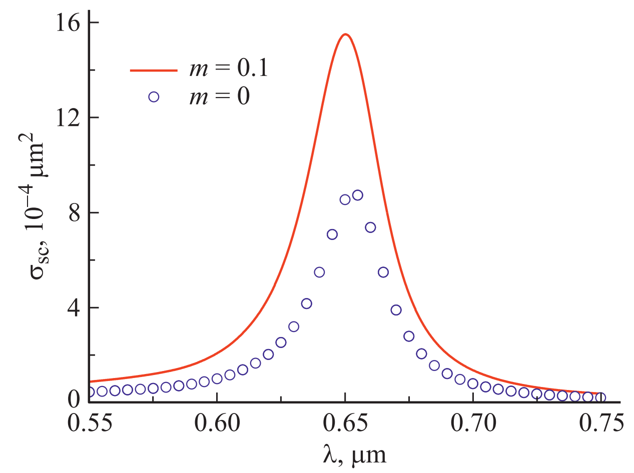

Рис. 2. То же, что и на рис. 1, но для сечения поглощения $\sigma_{abs}(\lambda)$ по формуле (14).

и сечение поглощения

$$\sigma_{abs}(\theta_0, \lambda) = -\mathrm{Re} \int_{\partial D_s} (\mathbf{E}_0^N + \mathbf{E}_0^0) \times (\mathbf{H}_0^N + \mathbf{H}_0^0)^* d\sigma. \tag{14}$$

Размерности интенсивности и сечения поглощения равны μm^2.

В наноплазмонике зачастую используют квазистационарное или дипольное приближения для анализа оптических свойств наночастиц [27]. Результаты, представленные на рис. 1, 2, призваны подчеркнуть важность строгого учета взаимодействия частицы с подложкой, а также неприменимость использования дипольного приближения в этом случае. А именно подчеркнуть различие в точности аппроксимации ближнего и дальнего полей. Для этого выберем толщину слоя $d = 2$ nm и наклонный угол падения волны $\theta_0 = 45^\circ$. Все приведенные результаты соответствуют локальному случаю. В данном случае для аппроксимации поля плоской волны на ∂D_s с погрешностью $\approx 0.2\%$ требуется учет фурье-гармоник с азимутальными числами $m = 0, 1$. При этом $m = 0$ включает в себя вертикальные и горизонтальные диполи, а $m = 0, 1$ еще и горизонтальные квадруполи, распределенные вдоль оси вращения. На рис. 1 приведены результаты сравнения $\sigma_{\text{sc}}(\lambda)$ для $m = 0$ и $m = 0, 1$. Легко видеть, что эти результаты совпадают с графической точностью. На рис. 2 приведены результаты сравнения для $\sigma_{\text{abs}}(\lambda)$, которые различаются почти в два раза. Это сравнение подчеркивает необходимость использования строгих подходов при анализе характеристик ближнего поля.

Перейдем к анализу влияния нелокальности на коэффициент усиления (13) и сечение поглощения (14). Для золота соответствующие квантовые параметры, необходимые для вычисления нелокальных величин ε_L и k_L, выбраны равными [14]:

$$\hbar\omega_p = 8.99\,\text{eV}, \;\; \hbar\gamma = 0.025\,\text{eV},$$

$$\nu_F = 1.39 \cdot 10^{12}\,\mu\text{m/s}, \;\; D = 9.62 \cdot 10^{8}\,\mu\text{m}^2/\text{s}.$$

Задавая длину волны внешнего возбуждения λ, вычисляя соответствующее значение ω, легко определить значения нелокальных параметров ε_L и k_L.

На рис. 3, 4 приведены сравнительные результаты расчета коэффициента усиления и сечения поглощения для пленки толщиной $d = 2$ и 3 nm в зависимости от угла падения плоской волны θ_0 при фиксированных длинах волн. Видно, что обе величины монотонно возрастают при увеличении угла падения. В то же время учет ЭН приводит к существенному снижению величин максимумов. Например, для $d = 2$ nm у σ_{abs} оно составляет 33%, а у E — почти 50%.

На рис. 5, 6 приведены те же величины, но в частотной области при фиксированном угле падения $\theta_0 = 45°$. Как

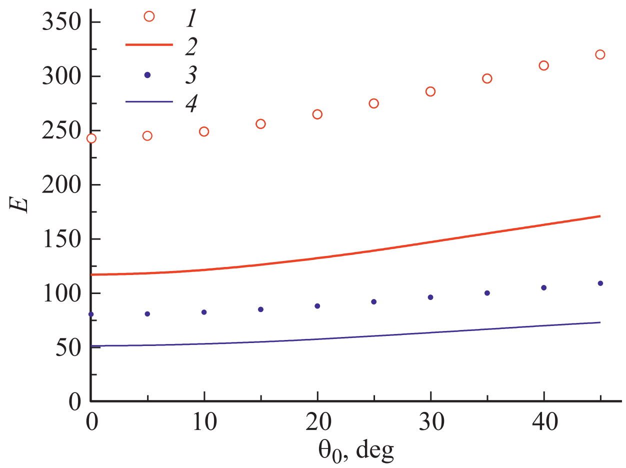

Рис. 3. Коэффициент усиления E по формуле (13) в зависимости от угла падения волны θ_0: $d = 2$ nm, $\lambda = 650$ nm, кружки *1* — локальный случай, сплошная кривая *2* — с учетом ЭН; $d = 3$ nm, $\lambda = 600$ nm, точки *3* — локальный случай, сплошная кривая *4* — с учетом ЭН.

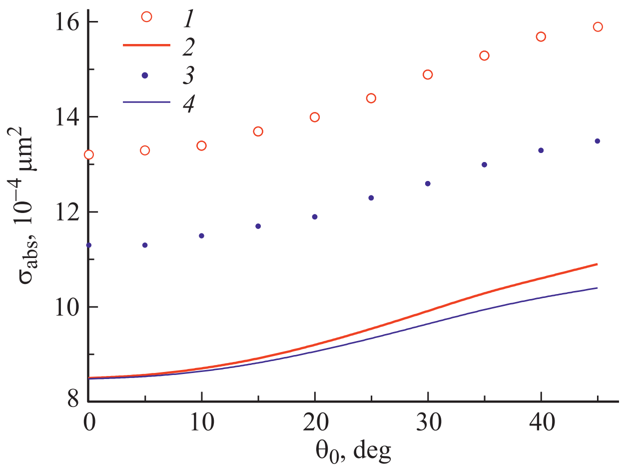

Рис. 4. То же, что и на рис. 3, но для сечения поглощения σ_{abs} по формуле (14).

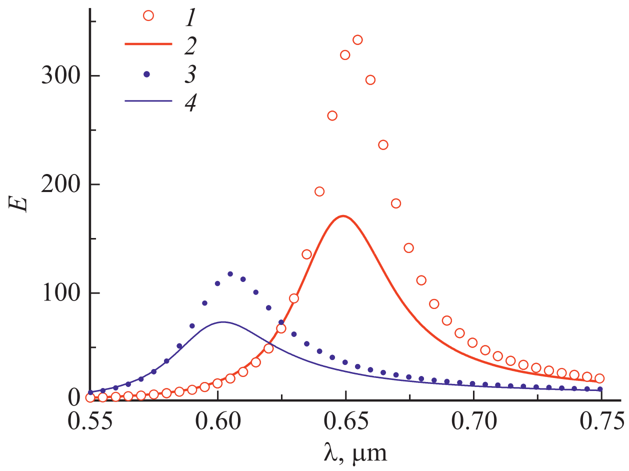

Рис. 5. Коэффициент усиленияE по формуле (13) в зависимости от длины волны λ, угол падения $\theta_0 = 45°$: $d = 2$ nm, кружки *1* — локальный случай, сплошная кривая *2* — с учетом ЭН; $d = 3$ nm, точки *3* — локальный случай, сплошная кривая *4* — с учетом ЭН.

и раньше, заметно, что учет ЭН приводит к снижению их значений. Причем сильнее это влияние проявляется для коэффициента усиления. На рисунках также заметен небольшой сдвиг плазмонного резонанса в область коротких длин волн.

Рис. 7, 8 посвящены случаю возбуждения слоистой частицы неизлучающими волнами, когда плоская волн распространяется из призмы в верхнее полупространство, заполненное водой. Неизлучающие волны широко используются в современной оптике [6,7, 17]. В данном случае область неизлучающих волн располагается перед углом, равным $\theta_c = 118.7°$. Мы выбрали угол падения волны $\theta_0 = 116.7°$. В этом случае удается увеличить значения E почти на 30%, а сечение поглощения — более чем в 4 раза по сравнению со случаем падения волны сверху (рис. 5, 6). При этом снова учет ЭН приводит к

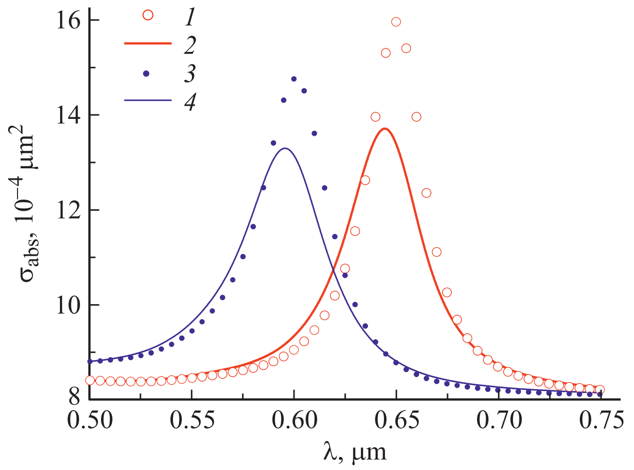

Рис. 6. То же, что и на рис. 5, но для сечения поглощения σ_{abs} по формуле (14).

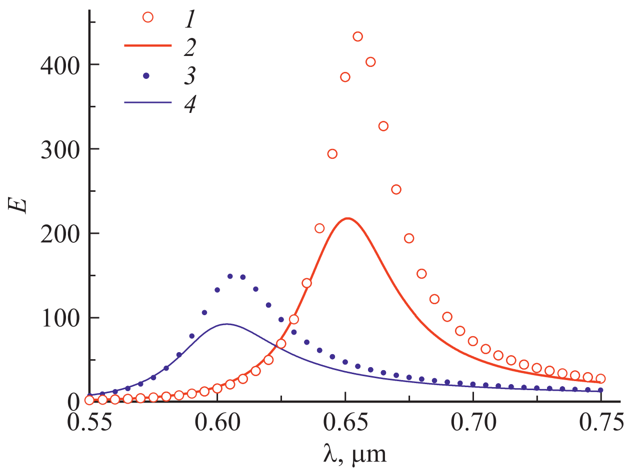

Рис. 7. Коэффициент усиления E по формуле (13) в зависимости от длины волны λ, угол падения $\theta_0 = 116.7^\circ$ — область неизлучающих волн: $d = 2$ nm, кружки *1* — локальный случай, сплошная кривая *2* — с учетом ЭН; $d = 3$ nm, точки *3* — локальный случай, сплошная кривая *4* — с учетом ЭН.

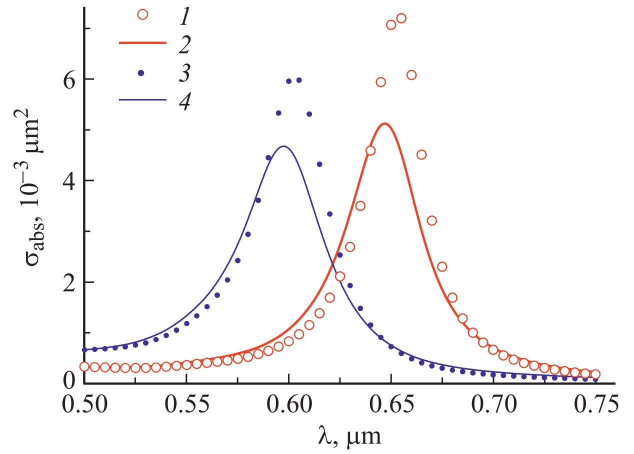

Рис. 8. То же, что на рис. 7, но для сечения поглощения σ_{abs}.

снижению максимумов величин и небольшому сдвигу в коротковолновую область.

Финансирование работы

Работа выполнена при финансовой поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (проект № 20-01-00558).

Список литературы

[1] *Xu D., Xiong X., Wu L. et al.* // Adv. Opt. Photon. 2018. V. 10. N 4. P. 703. doi 10.1364/AOP.10.000703

[2] *Zhang S., Geryak R., Geldmeier J., Kim S., Tsukruk V.V.* // Chem. Rev. 2017. V. 117. P. 12942. doi 10.1021/acs.chemrev.7b00088

[3] *Kalambate P.K., Dhanjai Huang Z., Li Y. et al.* / Trends Analyt. Chem. 2019. V. 115. P.1 47–161. doi 10.1016/j.trac.2019.04.002

[4] *Evlyukin A., Nerkararyan K.V., Bozhevolnyi S.I.* // Opt. Express. 2019. V. 27. P. 17474. doi 10.1364/OE.27.017474

[5] *Балыкин В.И.* //УФН. 2018. Т. 188. № 9. С. 935. doi 10.3367/UFNr.2017.09.038206

[6] *Sidorenko I., Nizamov Sh., Hergenr?de R., Zybin A. et al.* // Microchim. Acta. 2016. V. 183. P. 101. doi 10.1007/s00604-015-1599-0

[7] *Avşar D., Ertürk H., Mengüç M.P.* // Mater. Res. Express. 2019. V. 6. P. 065006. doi 10.1088/2053-1591/ab07fd

[8] *Barbry M., Koval P., Marchesin F., Esteban R. et al.* // Nano Lett. 2015. V. 15. P. 3410. doi 10.1021/acs.nanolett.5b00759

[9] *David C., García de Abajo F.J.* // J. Phys. Chem. C. 2011. V. 115. P. 19470. doi 10.1021/jp204261u

[10] *Ciraci C., Pendry J.B., Smith D.R.* // Chem. Phys. Chem. 2013. V. 14. P. 1109. doi 10.1002/cphc.201200992

[11] *Derkachova A., Kolwas K., Demchenko I.* // Plasmonics. 2016. V. 11. P. 941. doi 10.1007/s11468-015-0128-7

[12] *Mortensen N.A., Raza S., Wubs M., Søndergaard T., Bozhevolnyi S.I.* // Nature Commun. 2014. V. 5. P. 3809. doi 10.1038/ncomms4809

[13] *Tserkezi C., Stefanou N., Wubs M., Mortensen N.A.* // Nanoscale. 2016. V. 8. P. 17532. doi 10.1039/C6NR06393D

[14] *Wubs M., Mortensen A.* // Quantum Plasmonics / Ed. by Bozhevolnyi S.I. et al. Springer, Switzerland. 2017. P. 279–302. doi 10.1007/978-3-319-45820-5_12

[15] *Eremina E., Eremin Y., Wriedt T.* // J. Mod. Opt. 2011. V. 58. P. 384. doi 10.1080/09500340.2010.515751

[16] *Doicu A., Eremin Yu., Wriedt T.* Acoustic and Electromagnetic Scattering Analysis Using Discrete Sources. Academic Press, San Diego, 2000.

[17] *Гришина Н.В., Еремин Ю.А., Свешников А.Г.* // Опт. и спектр. 2013. Т. 115. № 1. С. 133–139. doi 10.7868/S0030403413070076; *Grishina N.V., Eremin Yu.A., Sveshnikov A.G.* // Opt. Spectrosc. 2013. V. 115. № 1. С. 136. doi 10.1134/S0030400X13070072

[18] *Еремин Ю.А., Свешников А.Г.* // ЖВМиМФ. 2019. Т. 59. № 12. С. 2175. doi 10.1134/S0044466919100065; *Eremin Yu.A., Sveshnikov A.G.* // Comput. Math. Math. Phys. 2019. V. 59. N 12. P. 2164. doi 10.1134/S0965542519100063

[19] *Eremin Yu., Doicu A., Wriedt T.* // J. Quant. Spectr. Rad. Trans. 2019. V. 235. P. 300. doi 10.1016/j.jqsrt.2019.07.012

[20] *Лифшиц Е.М., Питаевский Л.П.* Физическая кинетика. М.: Наука, 1978. С. 167.
[21] *Doicu A., Eremin Yu., Wriedt T.* // J. Quant. Spectr. Rad. Trans. 2020. V. 242. P. 106756. doi 10.1016/j.jqsrt.2019.106756
[22] *Jerez-Hanckes C., Nédélec J.C.* // Commun. Comput. Phys. 2012. V. 11. N 2. P. 629. doi 10.4208/cicp.231209.150910s
[23] *Гришина Н.В., Еремин Ю.А., Свешников А.Г.* // Опт. и спектр. 2012. Т. 113. № 4. С. 484; *Grishina N.V., Eremin Yu.A., Sveshnikov A.G.* // Opt. Spectrosc. 2012. V. 113. N 4. P. 440. doi 10.1134/S0030400X12100049
[24] *Борн М., Вольф Э.* Основы оптики. М.: Наука, 1973. 713 с. *Born M., Wolf E.* Principles of Optics. N Y.: Pergamon Press, 1964.
[25] *Бахвалов Н.С.* Численные методы. М.: Наука, 1975. 632 с.
[26] *Johnson P.B., Christy R.W.* // Phys. Rev. B. 1972. V. 6. P. 4370.
[27] *Khlebtsov N.G., Khlebtsov B.N.* // J. Quant. Spectr. Rad. Trans. 2017. V. 190. P. 89. doi 10.1016/j.jqsrt.2017.01.027