

МИНИСТЕРСТВО НАУКИ И ОБРАЗОВАНИЯ РФ

МОСКОВСКИЙ ФИЗИКО-ТЕХНИЧЕСКИЙ ИНСТИТУТ
(ГОСУДАРСТВЕННЫЙ УНИВЕРСИТЕТ)

Выпускная квалификационная работа на степень бакалавра:

**ИССЛЕДОВАНИЕ ПЛАЗМОННОГО НАНОИСТОЧНИКА
ОПТИЧЕСКОГО ИЗЛУЧЕНИЯ**

Студент–дипломник _____ Парфеньев В.М.

Научный руководитель
член-корр. РАН _____ Лебедев В.В.

Рецензент
к.ф.-м.н. _____ Габитов И.Р.

Зав. кафедрой
д.ф-м.н, профессор _____ Фейгельман М.В.

Москва 2011

Содержание

1	Введение	2
2	Резонансное взаимодействие света с усиливающей средой	3
2.1	Взаимодействие атома с электрическим полем	3
2.2	Феноменологический ввод затухания и накачки	4
2.3	Приближение вращающейся волны	5
3	Оптически активная среда	6
3.1	Уравнения Максвелла	6
3.2	Диэлектрическая проницаемость	7
3.3	Отступление о классичности поля	7
4	Генерация лазера	8
4.1	Собственная мода	8
4.2	Порог генерации	9
4.3	Вырождение моды	10
5	Амплитуда поля внутри шарика	11
5.1	Баланс энергий	11
5.2	Стационарный случай. Сильные поля	12
5.3	Отступление об излучении	12
5.4	Стационарный случай. Слабые поля	13
6	Сравнение с экспериментом	16
7	Заключение	16
8	Приложение А: Усреднение комплексных векторов	17
9	Литература	18

1 Введение

В последнее время научное сообщество активно развивает область физики, связанную с плазмонными эффектами на нанометровом масштабе. Предпосылкой для такой деятельности служит естественное желание людей создавать более компактные и быстрые устройства. Одна из технологий, позволяющая это делать, основывается на работе с оптическим излучением. Важным элементом такой технологии является лазер. Однако любой лазер включает в себя резонатор, что приводит к принципиальному ограничению на минимальный размер этого устройства: он должен быть не менее половины используемой длины волны. До недавнего времени это ограничение казалось непреодолимым, но в последние годы появилась идея создания аналога лазера, который генерировал бы излучение за счет колебания поверхностных плазмонов (связанные осцилляции электронной жидкости в металле и электромагнитного поля). Роль резонатора в такой структуре выполняет металлическая часть устройства, и на ее размеры уже нет таких жестких ограничений. За подобным устройством в литературе закрепилось название SPASER (surface plasmon amplification by stimulated emission of radiation).

Впервые об успешном создании SPASER'a сообщается в экспериментальной работе [1]. Однако, несмотря на большой интерес к этому объекту среди ученых, до сих пор не была предложена адекватная теория, описывающая его работу. Невыясненными остались даже такие ключевые вопросы, как критерий генерации в системе и форма спектра устройства. С технологической точки зрения первый вопрос является наиболее принципиальным.

Целью данного исследования является описание работы созданного SPASER'a качественно и количественно. Особое внимание уделено порогу генерации в системе, а также ее поведению в случае незначительного и очень сильного превышения этого порога. Важным пунктом работы является сравнение полученных результатов с экспериментальными наблюдениями.

На основе работы [1] в качестве объекта рассматривается одиночная золотая наночастица сферической формы, окруженная диэлектрической оболочкой (см. рис. 2). Колебания поверхностных плазмонов неизбежно приводят к омическим потерям внутри металла, и для их компенсации в оболочку вводятся оптически активные атомы, которые затем накачиваются внешним излучением. Естественно возникает еще один вопрос: как описывать оптически активную среду? Этому вопросу посвящены второй и третий разделы данной работы. В четвертом разделе подробно обсуждается генерация в системе, в частности получен критерий ее начала. В пятом разделе рассматривается поведение SPASER'a в случае слабого и сильного превышения порога генерации. Шестой раздел полностью посвящен сравнению теории с экспериментальными наблюдениями. В заключении сформулированы основные результаты работы и указана их значимость.

2 Резонансное взаимодействие света с усиливающей средой

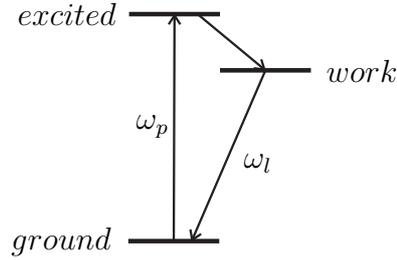


Рис. 1: Структура атомных уровней

Оболочка наночастицы содержит оптически активные атомы, структура уровней (интересных нам) которых изображена на Рис. 1. Переход "excited" \rightarrow "work" происходит быстро при участии фононов. Два остальных перехода в отсутствие внешнего возмущения происходят медленно, однако они могут ускоряться под действием внешнего резонансного электромагнитного поля.

Мы считаем, что рассматриваемая система освещается электромагнитной волной с частотой ω_p . Интенсивность этой волны предполагается постоянной во времени. Назначение этой волны заключается в накачке среды, т.е. создании инверсной заселенности уровней у атомов оптически активной среды. В дальнейшем будем называть эту волну накачивающей. Кроме того, наша система облучается еще и рабочей волной с частотой $\omega \approx \omega_l$. Будем предполагать, что эта волна является резонансной для плазменных колебаний, существующих в системе. В дальнейшем будем считать, что резонанс имеет место для моды с $l = 1$.

2.1 Взаимодействие атома с электрическим полем

Накачивающая волна приводит к появлению инверсной заселенности между уровнями "ground" и "work". Нам необходимо каким-то образом описать эту накачку, а также рассмотреть поведение атомов при включении рабочей волны. Для начала займемся вторым вопросом, для чего рассмотрим взаимодействие двухуровневого атома с электрическим полем (поле рабочей волны). Гамильтониан атома во внешнем электрическом поле:

$$\hat{H} = \hat{H}_0 - (\hat{\mathbf{d}} \cdot \mathbf{E}) \quad (1)$$

Здесь $\hat{\mathbf{d}}$ - оператор дипольного момента, \mathbf{E} - электрическое поле, а \hat{H}_0 - невозмущенный гамильтониан двухуровневого атома. Мы предполагаем, что разница энергий между двумя невозмущенными уровнями атома равна W_L , и что эти уровни обладают определенной четностью по отношению к операции инверсии в пространстве. Поэтому оператор дипольного момента в базисе стационарных функций гамильтониана \hat{H}_0 имеет ненулевыми только недиагональные элементы:

$$\hat{\mathbf{d}} = \begin{pmatrix} 0 & \mathbf{d} \\ \mathbf{d}^* & 0 \end{pmatrix} \quad (2)$$

Таким образом, полный гамильтониан двухуровневого атома во внешнем электрическом поле имеет вид:

$$\hat{H} = \begin{pmatrix} -W_L/2 & -\mathbf{d}\mathbf{E} \\ -\mathbf{d}^*\mathbf{E} & W_L/2 \end{pmatrix} \quad (3)$$

Введем в рассмотрение матрицу плотности, которую можно представить в виде:

$$\hat{\rho} = \frac{1}{2} + \begin{pmatrix} -N/2 & \rho \\ \rho^* & N/2 \end{pmatrix} \quad (4)$$

Величина N называется населенностью и изменяется от -1 до $+1$. Она характеризует вероятность атома находиться в возбужденном состоянии. Чтобы выяснить физический смысл второй величины ρ рассмотрим средний дипольный момент атома. Из (2) и (4) следует:

$$\langle \mathbf{d} \rangle = Tr(\hat{\mathbf{d}}\hat{\rho}) = \mathbf{d}\rho^* + \mathbf{d}^*\rho \quad (5)$$

Таким образом, недиагональные элементы матрицы плотности определяют атомную поляризацию. Из уравнения Лиувилля (его также называют уравнением Фон Неймана):

$$i\partial_t\hat{\rho} = [\hat{H}, \hat{\rho}] \quad (6)$$

Получаем следующие уравнения на компоненты матрицы плотности:

$$\partial_t N = 2i(\mathbf{d}^*\mathbf{E}\rho - \mathbf{d}\mathbf{E}\rho^*) \quad (7)$$

$$\partial_t \rho = iW_L\rho + iN\mathbf{d}\mathbf{E} \quad (8)$$

2.2 Феноменологический ввод затухания и накачки

Теперь учтем накачку системы. Уравнения Блоха дополняются новыми членами и приобретают вид:

$$\partial_t N = 2i(\mathbf{d}^*\mathbf{E}\rho - \mathbf{d}\mathbf{E}\rho^*) - \frac{N - N_s}{\tau} \quad (9)$$

$$\partial_t \rho = \left(iW_L - \frac{\Gamma}{2} \right) \rho + iN\mathbf{d}\mathbf{E} \quad (10)$$

Здесь N_s - равновесная заселенность в отсутствии рабочей волны. Время τ - время установления этой равновесной заселенности. Обратное время расфазировки Γ может не совпадать с временем релаксации τ , поскольку во время расфазировки могут вносить вклад процессы, не сопровождающие переход атома из возбужденного состояния в основное (например, столкновение с фононами).

2.3 Приближение вращающейся волны

В отсутствие внешнего электрического поля на рабочей частоте и затухания ($\mathbf{E} = \mathbf{0}$ и $\Gamma = 0$) матричный элемент ρ матрицы плотности $\hat{\rho}$ остается постоянным по модулю и осциллирует как $e^{iW_L t}$. Это непосредственно следует из уравнения (10). Мы предполагаем, что частота падающей волны W близка к W_L , так как именно в этом случае и должна происходить накачка волны энергией, запасенной в среде. Таким образом, мы представляем величины ρ и \mathbf{E} в виде:

$$\rho = \rho' e^{iWt} \quad (11)$$

$$\mathbf{E} = \frac{1}{2}(\mathbf{E}' e^{-iWt} + \mathbf{E}'^* e^{iWt}) \quad (12)$$

Мы считаем, что:

$$W_L \gg \Gamma \gg \frac{1}{\tau}, \quad \Delta = W_L - W \ll W_L \quad (13)$$

Приближение вращающейся волны состоит в удержании только медленно меняющихся членов, тогда как вклады, осциллирующие с частотой $2W_L$ отбрасываются. Тогда получим:

$$\partial_t N = i(\mathbf{d}^* \mathbf{E}' \rho' - \mathbf{d} \mathbf{E}'^* \rho'^*) - \frac{N - N_s}{\tau} \quad (14)$$

$$2\partial_t \rho' = (2i\Delta - \Gamma)\rho' + iN \mathbf{d} \mathbf{E}'^* \quad (15)$$

Стационарное решение в приближении вращающейся волны найдем, приравняв правые части (14) и (15) к нулю:

$$N = \frac{N_s}{1 + \frac{2|\mathbf{d}^* \mathbf{E}'|^2 \tau \Gamma}{\Gamma^2 + 4\Delta^2}} \quad (16)$$

$$\rho' = \frac{\mathbf{d} \mathbf{E}'^* N_s (i\Gamma - 2\Delta)}{\Gamma^2 + 4\Delta^2 + 2|\mathbf{d}^* \mathbf{E}'|^2 \tau \Gamma} \quad (17)$$

3 Оптически активная среда

В предыдущем разделе мы рассмотрели поведение оптически активного атома во внешнем поле. Перейдем теперь к описанию оптически активной среды, которая состоит из диэлектрической оболочки с введенными в нее активными атомами. Мы хотим научиться учитывать влияние этой среды на поле. Иными словами, мы хотим выяснить как активные атомы влияют на диэлектрическую проницаемость оболочки. Зная это, мы сможем записать на электромагнитное поле уравнения Максвелла, решение которых даст нам понимание того, как устроено поле в пространстве. Будем считать, что в достаточно малом объеме (электрическое поле можно считать однородным) находится большое число активных атомов с произвольно ориентированным дипольным моментом. По ориентациям этого вектора будем производить усреднение.

3.1 Уравнения Максвелла

Мы предполагаем, что среда не обладает магнитными свойствами, поэтому стартуем со следующих уравнений Максвелла:

$$\text{rot}\mathbf{H} = \frac{1}{c}\partial_t\varepsilon_d\mathbf{E} \quad (18)$$

$$\text{rot}\mathbf{E} = -\frac{1}{c}\partial_t\mathbf{H} \quad (19)$$

Полную диэлектрическую проницаемость среды представим в виде суммы двух слагаемых:

$$\varepsilon_d = \varepsilon_0(\mathbf{r}) + \varepsilon_{ind}(\mathbf{r}) \quad (20)$$

Где $\varepsilon_0(\mathbf{r})$ - распределение диэлектрической проницаемости в пространстве без учета присутствия оптически активных атомов. Поляризация же оптически активных атомов на единицу объема \mathbf{P}^{ind} вычисляется по формуле:

$$\mathbf{P}^{ind} = n\langle\hat{d}\rangle = n(\mathbf{d}^*\rho + \mathbf{d}\rho^*) \quad (21)$$

Здесь n - концентрация оптически активных атомов. В приближении вращающейся волны в стационарном случае имеем:

$$\mathbf{P}^{ind} = \frac{n\mathbf{d}(\mathbf{d}^*\mathbf{E}')N_s(-i\Gamma - 2\Delta)}{\Gamma^2 + 4\Delta^2 + 2|\mathbf{d}^*\mathbf{E}'|^2\tau\Gamma}e^{-iWt} + c.c. \quad (22)$$

В дальнейшем будем пользоваться соотношением:

$$\mathbf{P}^{ind} = \mathbf{P}'^{ind}e^{-iWt} + c.c. \quad (23)$$

3.2 Диэлектрическая проницаемость

Выражение (22) необходимо усреднить по направлениям вектора \mathbf{d} . Нам будет интересно случай слабых полей, когда можно ограничиться кубическим вкладом по полю. Используя формулы (см. Приложение А):

$$\langle \mathbf{d}_i \mathbf{d}_j^* \rangle = \frac{1}{3} |d|^2 \delta_{ij} \quad (24)$$

$$\langle \mathbf{d}_i \mathbf{d}_j \mathbf{d}_k^* \mathbf{d}_l^* \rangle = \frac{1}{12} |d|^4 (\delta_{ik} \delta_{jl} + \delta_{il} \delta_{jk}) \quad (25)$$

Получаем выражение для вектора поляризации:

$$\mathbf{P}'_{i\text{ind}} = -\frac{1}{3} \frac{n N_s |d|^2 (i\Gamma + 2\Delta)}{\Gamma^2 + 4\Delta^2} \left(1 - \frac{|d|^2 \tau \Gamma}{(\Gamma^2 + 4\Delta^2)} |\mathbf{E}'|^2 \right) \mathbf{E}'_i \quad (26)$$

Тогда поправка к диэлектрической проницаемости, возникающая из-за накачки:

$$\varepsilon_{\text{ind}}(\mathbf{r}) = -\frac{4\pi}{3} \frac{n N_s |d|^2 (i\Gamma + 2\Delta)}{\Gamma^2 + 4\Delta^2} \left(1 - \frac{|d|^2 \tau \Gamma}{(\Gamma^2 + 4\Delta^2)} |\mathbf{E}'|^2 \right) \quad (27)$$

При малых значениях поля соотношение между поляризацией и полем становится линейным, и добавка к диэлектрической проницаемости $\varepsilon_{\text{ind}}(\mathbf{r})$ стремится к значению:

$$\varepsilon_{\text{ind}}(\mathbf{r}) = -\frac{4\pi}{3} \frac{n N_s |d|^2}{(2\Delta - i\Gamma)} \quad (28)$$

Таким образом, диэлектрическая проницаемость среды, которая содержит оптически активные атомы, равна:

$$\varepsilon_d = \varepsilon'_d + i\varepsilon''_d(\mathbf{r}) \quad (29)$$

Будем считать, что мнимый вклад определяется исключительно оптически активными атомами, и потому он отрицателен, $\varepsilon''_{\text{ind}}(\mathbf{r}) < 0$ (собственные потери в среде малы, и в дальнейшем мы ими пренебрегаем).

3.3 Отступление о классичности поля

Посмотрим еще раз на формулу (27). Если в ней положить $\Delta < 0$, то мнимая часть диэлектрической проницаемости все равно остается отрицательной, хотя очевидно, что, например, один атом не сможет "накачивать" плазмон, частота которого больше частоты перехода в этом атоме. Кажущаяся несуразность возникает из-за того, что в нашем рассмотрении поле классическая величина, а в случае одного атома это предположение неверно. Подробнее этот вопрос рассмотрен в [2].

4 Генерация лазера

Знание диэлектрической проницаемости оптически активной среды позволяет найти распределение электромагнитного поля в пространстве. В общем случае волновое уравнение представляет из себя уравнение Гельмгольца, однако в нашем случае мы можем ограничиться решением более простого уравнения Лапласа. Дело в том, что согласно эксперименту из работы [1], поле меняется на расстояниях много меньших длины волны в вакууме c/ω . Поэтому можно пренебречь правой частью в уравнении (19), после чего получаем, что поле \mathbf{E} потенциально, и следовательно, его можно представить в виде градиента некоторого потенциала:

$$\text{rot}\mathbf{E} = 0 \quad \Rightarrow \quad \mathbf{E} = -\nabla\varphi \quad (30)$$

Если теперь взять дивергенцию от обеих частей второго из уравнений (30), то получим уравнение Лапласа, так как $\text{div}\mathbf{E} = 0$ везде, кроме границ. Такое приближение называется квазистатическим.

4.1 Собственная мода

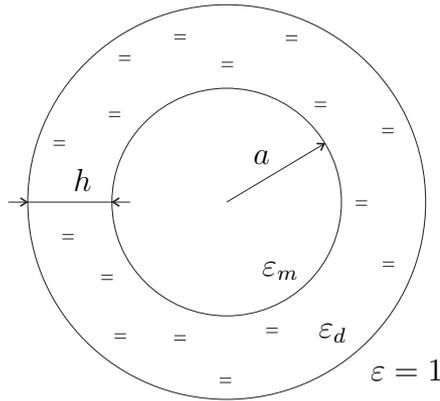


Рис. 2: Исследуемая система

Определим собственные моды в системе. В рамках квазистатического приближения нам нужно решить уравнение Лапласа ($\Delta\varphi = 0$; $\varphi \rightarrow 0$, $r \rightarrow \infty$). Его решения в соответствующих областях:

$$\begin{aligned} \varphi_m &= r^l Y_{lm} \\ \varphi_d &= Ar^l Y_{lm} + Br^{-(l+1)} Y_{lm} \\ \varphi_{out} &= Cr^{-(l+1)} Y_{lm} \end{aligned} \quad (31)$$

Граничные условия:

$$\begin{aligned} \varphi_m|_{r=a} &= \varphi_d|_{r=a} \\ \varphi_d|_{r=a+h} &= \varphi_{out}|_{r=a+h} \end{aligned} \quad (32)$$

$$\begin{aligned} \varepsilon_m \frac{\partial \varphi_m}{\partial n} |_{r=a} &= \varepsilon_d \frac{\partial \varphi_d}{\partial n} |_{r=a} \\ \varepsilon_d \frac{\partial \varphi_d}{\partial n} |_{r=a+h} &= \frac{\partial \varphi_{out}}{\partial n} |_{r=a+h} \end{aligned} \quad (33)$$

Приводят к следующим соотношениям:

$$A = \frac{\frac{\varepsilon_m}{\varepsilon_d}l + (l + 1)}{2l + 1} \quad (34)$$

$$B = \frac{a^{2l+1}l(1 - \frac{\varepsilon_m}{\varepsilon_d})}{2l + 1} \quad (35)$$

$$C = \frac{\frac{\varepsilon_m}{\varepsilon_d}l + (l + 1)}{2l + 1}(a + h)^{2l+1} + \frac{a^{2l+1}l(1 - \frac{\varepsilon_m}{\varepsilon_d})}{2l + 1} \quad (36)$$

$$(1 + \frac{h}{a})^{2l+1}[(\varepsilon_m + \varepsilon_d)l + \varepsilon_d]\{1 + \frac{l+1}{l}\frac{1}{\varepsilon_d}\} = (\varepsilon_d - \varepsilon_m)(l + 1)\{1 - \frac{1}{\varepsilon_d}\} \quad (37)$$

Где последнее выражение и есть условие существования связанной моды. В интересующем нас случае ($l = 1$) эти соотношения записываются:

$$A = \frac{\varepsilon_m + 2\varepsilon_d}{3\varepsilon_d} \quad (38)$$

$$B = \frac{a^3(\varepsilon_d - \varepsilon_m)}{3\varepsilon_d} \quad (39)$$

$$C = \frac{\varepsilon_m + 2\varepsilon_d}{3\varepsilon_d}(a + h)^3 + \frac{a^3(\varepsilon_d - \varepsilon_m)}{3\varepsilon_d} \quad (40)$$

$$\frac{(\varepsilon_m + 2\varepsilon_d)(\varepsilon_d + 2)}{(\varepsilon_d - \varepsilon_m)(\varepsilon_d - 1)} = 2 \left(1 + \frac{h}{a}\right)^{-3} \quad (41)$$

Существование собственной моды по сути означает возможность генерации в системе. Таким образом, условие (41) определяет порог генерации в системе.

4.2 Порог генерации

Будучи комплексным, уравнение (41) содержит в себе два: на действительную и мнимую части. Их нетрудно записать в явном виде:

$$(a + h)^3[(\varepsilon'_m + 2\varepsilon'_d)(\varepsilon'_d + 2) - \varepsilon''_d(\varepsilon''_m + 2\varepsilon''_d)] = 2a^3[(\varepsilon'_d - \varepsilon'_m)(\varepsilon'_d - 1) - \varepsilon''_d(\varepsilon''_d - \varepsilon''_m)] \quad (42)$$

$$(a + h)^3[\varepsilon''_d(\varepsilon'_m + 4\varepsilon'_d + 4) + \varepsilon''_m(\varepsilon'_d + 2)] = 2a^3[\varepsilon''_d(2\varepsilon'_d - \varepsilon'_m - 1) + \varepsilon''_m(1 - \varepsilon'_d)] \quad (43)$$

Зная зависимость диэлектрической проницаемости металла от частоты и используя выражение (28), можно найти неизвестные величины Δ и N_s . В самом простом приближении можно считать, что ε_m не зависит от частоты. Это разумно, так как реальная зависимость этой величины от частоты плавная, по сравнению с зависимостью $\varepsilon_d(\omega)$ (см. (28)). Но даже столь сильное упрощение не позволяет получить аналитическое выражение для интересующих нас величин. В ходе вычислений возникает уравнение 4 степени, которое не смотря на то, что разрешимо, имеет очень длинный ответ. Таким образом, для решения данной задачи разумнее использовать численный счет.

Также интерес представляет предельный случай: $\varepsilon_d'', \varepsilon_m'' \ll \varepsilon_d', \varepsilon_m'$. В этом случае уравнения (42)-(43) упрощаются:

$$(a+h)^3(\varepsilon_m' + 2\varepsilon_d')(\varepsilon_d' + 2) - 2a^3(\varepsilon_d' - \varepsilon_m')(\varepsilon_d' - 1) = 0 \quad (44)$$

$$\varepsilon_d'' = \varepsilon_m'' \frac{2a^3(1 - \varepsilon_d') - (a+h)^3(\varepsilon_d' + 2)}{(a+h)^3(\varepsilon_m' + 4\varepsilon_d' + 4) + 2a^3(\varepsilon_m' + 1 - 2\varepsilon_d')} \quad (45)$$

Из первого уравнения находим:

$$\varepsilon_d' = \frac{-\left\{(\varepsilon_m' + 4) + \frac{2a^3}{(a+h)^3}(\varepsilon_m' + 1)\right\} + \sqrt{(\varepsilon_m' - 4)^2 + \frac{4a^6}{(a+h)^6}(\varepsilon_m' - 1)^2 + \frac{4a^3}{(a+h)^3}(\varepsilon_m'^2 + 13\varepsilon_m' + 4)}}{4\left\{1 - \frac{a^3}{(a+h)^3}\right\}} \quad (46)$$

А ε_d'' находим подстановкой (46) в (45). Для величин Δ и N_s получим выражения:

$$\Delta^* = \frac{\Gamma(\varepsilon_d' - \varepsilon_0)}{2 \varepsilon_d''} \quad (47)$$

$$N_s^* = -\frac{3\varepsilon_d''}{4\pi n|d|^2} \Gamma\left(1 + \left(\frac{\varepsilon_d' - \varepsilon_0}{\varepsilon_d''}\right)^2\right) \quad (48)$$

4.3 Вырождение моды

Стоит отметить, что изучаемая мода ($l = 1$) трехкратно вырождена ($m = -1, 0, 1$). Это вырождение не приводит к существенным эффектам, пока оно не снято. Оно приводит лишь к тому, что в системе возможны три различных направления "оси моды". Ситуация полностью аналогична р-состоянию атома водорода (волновые функции переводятся друг в друга вращением, подобно тому, как в нашем случае можно переводить вращением друг в друга "оси моды"). Однако технология изготовления золотых наночастиц сложна и пока еще далека от совершенства: неидеальная сферичность шариков снимает вырождение (другим фактором, который также может снимать вырождение является внешнее поле). Так как цель данной работы состоит в получении основных соотношений, то мы оставим этот вопрос за рамками нашего исследования.

5 Амплитуда поля внутри шарика

Перейдем к вычислению поля внутри металлического шарика. Особенный интерес представляют два предельных случая: сильной и слабой накачки. В стационарном случае должен выполняться баланс энергий: омические потери и излучение системы должны полностью компенсироваться энергией, которую плазмонные колебания забирают от оптически активной среды. Поэтому разумно начать рассмотрение вопроса с точки зрения баланса энергий. Отметим, что как будет показано в разделе 5.3 потери на излучение малы по сравнению с омическими, поэтому ими можно пренебречь, что приводит к существенному упрощению расчетов.

5.1 Баланс энергий

Наша система, в приближении вращающейся волны, описывается системой уравнений:

$$\partial_t N = i(\mathbf{d}^* \mathbf{E}' \rho' - \mathbf{d} \mathbf{E}'^* \rho'^*) - \frac{N - N_s}{\tau} \quad (49)$$

$$2\partial_t \rho' = (2i\Delta - \Gamma)\rho' + iN \mathbf{d} \mathbf{E}'^* \quad (50)$$

$$\text{rot } \mathbf{H} = \frac{1}{c}(\varepsilon_0 \partial_t \mathbf{E} + 4\pi \partial_t \mathbf{P}^{ind}) \quad (51)$$

$$\mathbf{P}^{ind} = n(\mathbf{d}^* \rho + \mathbf{d} \rho^*) \quad (52)$$

$$\text{rot } \mathbf{E} = -\frac{1}{c} \partial_t \mathbf{H} \quad (53)$$

Где связь штрихованных величин с обычными дается соотношениями:

$$\rho = \rho' e^{iWt} \quad (54)$$

$$\mathbf{E} = \frac{1}{2}(\mathbf{E}' e^{-iWt} + \mathbf{E}'^* e^{iWt}) \quad (55)$$

Изменение энергии системы определяется потоком вектора Пойтинга через окружающую ее поверхность. Выберем поверхность, совпадающую с внешней границей оптически активной среды. Тогда:

$$\frac{\partial E_{full}}{\partial t} = - \int_{surf} \mathbf{S} df = - \int_V \text{div} \mathbf{S} dV \quad (56)$$

Так как $\mathbf{S} = \frac{c}{4\pi} [\mathbf{E}, \mathbf{H}]$, а $\text{div} [\mathbf{a}, \mathbf{b}] = \mathbf{b} \text{ rot } \mathbf{a} - \mathbf{a} \text{ rot } \mathbf{b}$, то с учетом уравнений (51)-(53):

$$\frac{\partial E_{full}}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial t} \int_V \frac{\mathbf{H}^2}{8\pi} dV + \frac{\partial}{\partial t} \int_V \frac{\varepsilon_0 \mathbf{E}^2}{8\pi} dV + \int_V \mathbf{E} \partial_t \mathbf{P}^{ind} dV \quad (57)$$

Преобразуя последнее слагаемое с учетом уравнений Блоха (49)-(50), получим:

$$\begin{aligned} \frac{\partial E_{full}}{\partial t} = & \frac{\partial}{\partial t} \int_V \frac{\mathbf{H}^2}{8\pi} dV + \frac{\partial}{\partial t} \int_V \frac{\varepsilon_0 \mathbf{E}^2}{8\pi} dV + \frac{W}{2} \int_V \left(\partial_t N + \frac{N - N_s}{\tau} \right) ndV + \\ & + \frac{1}{2} \int_V \left[(i\Delta - \frac{\Gamma}{2}) \rho' \mathbf{E}' \mathbf{d}^* + (-i\Delta - \frac{\Gamma}{2}) \rho'^* \mathbf{E}'^* \mathbf{d} \right] ndV \end{aligned} \quad (58)$$

Где последняя строка происходит из $\partial_t \rho'$ и $\partial_t \rho'^*$, а предпоследнее слагаемое - из дифференцирования экспонент. Упрощая еще, получим:

$$\frac{\partial E_{full}}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial t} \int_V \frac{\mathbf{H}^2}{8\pi} dV + \frac{\partial}{\partial t} \int_V \frac{\varepsilon_0 \mathbf{E}^2}{8\pi} dV + \frac{W_L}{2} \int_V \left(\partial_t N + \frac{N - N_s}{\tau} \right) ndV - \quad (59)$$

$$-\frac{\Gamma}{4} \int_V (\rho' \mathbf{E}' \mathbf{d}^* + \rho'^* \mathbf{E}'^* \mathbf{d}) ndV$$

5.2 Стационарный случай. Сильные поля

Теперь определим амплитуду поля внутри шарика в установившемся режиме. Левая часть выражения (58) равна нулю, в то время как в правой отличны от нуля второе и третье слагаемые. Второе слагаемое следует понимать как:

$$\frac{1}{4\pi} \int_V \mathbf{E} \frac{\partial \mathbf{D}}{\partial t} dV = \frac{\varepsilon'' W}{8\pi} \int_V |\mathbf{E}'|^2 dV \quad (60)$$

То есть его смысл - это омические потери внутри шарика (напомним, мы договорились считать, что в среде окружающей шарик отсутствует диссипация). Третье слагаемое по смыслу представляет из себя энергию, передаваемую оптически активными атомами плазмонному колебанию. С использованием стационарных уравнений Блоха оно преобразуется к виду:

$$\frac{W}{2} \int_V \frac{N - N_s}{\tau} ndV = - \int_V \frac{W N_s |\mathbf{d}^* \mathbf{E}'|^2 \Gamma}{\Gamma^2 + 4\Delta^2 + 2|\mathbf{d}^* \mathbf{E}'|^2 \tau \Gamma} ndV \quad (61)$$

Наибольший интерес представляет случай сильных полей. Тогда в знаменателе можно оставить только член с полем, и для оценки поля внутри шарика получим выражение:

$$\int_V |\mathbf{E}'|^2 dV = \frac{4\pi N_s}{\varepsilon_m'' \tau} Z \quad (62)$$

Где Z - число оптически активных атомов, содержащихся в оболочке.

5.3 Отступление об излучении

В предыдущем разделе мы никак не учли то обстоятельство, что наша система также излучает электромагнитные волны. Покажем, что такие потери в энергии значительно меньше омических, и поэтому ими можно пренебречь. По порядку величины дипольное излучение:

$$I_{dip} = \frac{\omega^4 d^2}{c^3} \approx \frac{\omega^4 E^2 d^6}{c^3} \quad (63)$$

Здесь мы считали, что размер системы $\sim a$ (иными словами, $h \sim a$). А также в качестве оценки для поля взяли поле внутри шарика (иными словами, $|\varepsilon_d| \sim |\varepsilon_m|$). Для омических потерь внутри шарика на основании формулы (60) запишем:

$$I_{om} \approx \omega \varepsilon_m'' E^2 a^3 \quad (64)$$

Таким образом:

$$\frac{I_{dip}}{I_{om}} \approx \frac{(ka)^3}{\varepsilon_m''} \ll 1 \quad (65)$$

5.4 Стационарный случай. Слабые поля

В разделе 4.2 мы нашли пороговое значение N_s^* при достижении которого, становится возможной генерация в системе, и она происходит на частоте $W_L - \Delta^*$, где W_L - расстояние между уровнями в молекуле оптически активной среды. Теперь мы хотим выяснить, что будет с системой при увеличении равновесной заселенности на величину δN_s . При этом нас будет интересовать стационарный случай, когда $\partial_t \rho' = 0$, а значит, мы можем описывать оптически активную среду с помощью диэлектрической проницаемости (27).

Основной механизм установления амплитуды прост: за счет нелинейности модуль мнимой части диэлектрической проницаемости оптически активной среды уменьшается (при увеличении поля), что приводит к уменьшению энергии, передаваемой плазмонному колебанию. Увеличение поля происходит до тех пор, пока омические потери не сравняются с энергией, забираемой от активной среды. Перейдем к теоретическому описанию данного явления. Согласно уравнению Максвелла:

$$\text{rot} \mathbf{H} = \frac{\varepsilon}{c} \partial_t \mathbf{E} = -\frac{\varepsilon}{c} i \omega \mathbf{E} \quad (66)$$

$$\text{div} \text{rot} \mathbf{H} = 0 \quad \Rightarrow \quad \text{div} (\varepsilon \text{grad} \Phi) = 0 \quad (67)$$

Будем думать про это как $H|\Phi\rangle = 0$, $H = \text{div} (\varepsilon \text{grad} \cdot)$. При $N_s \rightarrow N_s^* + \delta N_s$ диэлектрическая проницаемость также изменится: $\varepsilon \rightarrow \varepsilon^* + \delta \varepsilon_{N_s} + \delta \varepsilon_{nl} + \delta \varepsilon_{\Delta}$. В изменение ε входят три слагаемых: первое отвечает изменению самого N_s , второе учитывает тот факт, что при увеличении N_s в системе меняется электрическое поле, а следовательно и ε за счет нелинейной поправки по полю, третье отражает изменение за счет возможного изменения частоты, на которой происходит генерация. Таким образом:

$$H = H^* + \delta H \quad (68)$$

$$\Phi = \Phi^* + \delta \Phi \quad (69)$$

Введем обозначение: $\langle \Phi | H | \Phi \rangle = \int_V \Phi \text{div} (\varepsilon \text{grad} \Phi) dV$. На основании (67), получим $\langle \Phi | H | \Phi \rangle = 0$. Тогда в первом порядке по возмущениям:

$$\langle \Phi | H | \Phi \rangle = \langle \Phi^* | H^* | \Phi^* \rangle + \langle \delta \Phi | H^* | \Phi^* \rangle + \langle \Phi^* | H^* | \delta \Phi \rangle + \langle \Phi^* | \delta H | \Phi^* \rangle = 0 \quad (70)$$

Первые два слагаемых равны нулю на основании (67). Рассмотрим третье:

$$\int_V \Phi^* \operatorname{div} (\varepsilon^* \operatorname{grad} \delta\Phi) dV = - \int_V (\operatorname{grad} \Phi^*) \varepsilon^* (\operatorname{grad} \delta\Phi) dV = \int_V \delta\Phi \operatorname{div} (\varepsilon^* \operatorname{grad} \Phi^*) dV \quad (71)$$

Последний интеграл тождественно равен $\langle \delta\Phi | H | \Phi^* \rangle = 0$. Таким образом, мы получили уравнение: $\langle \Phi^* | \delta H | \Phi^* \rangle = 0$. Аналогично первому переходу в (71) окончательно напомним:

$$\int_V \delta\varepsilon (\nabla\Phi^*)^2 dV = 0 \quad (72)$$

Приращение $\delta\varepsilon \neq 0$ только в области оптически активной среды. Следовательно, интеграл по всему объему свелся к интегралу по активной среде. Так как $\delta\varepsilon = \delta\varepsilon_{N_s} + \delta\varepsilon_{\Delta} + \delta\varepsilon_{nl}(\mathbf{r})$, то удобно интеграл разбить на два:

$$J = J_1 + J_2 = (\delta\varepsilon_{N_s} + \delta\varepsilon_{\Delta}) \int_V (\nabla\Phi^*)^2 dV + \int_V \delta\varepsilon_{nl}(\mathbf{r}) (\nabla\Phi^*)^2 dV \quad (73)$$

Используя теорему Гаусса-Остроградского, мы можем упростить первый интеграл:

$$\int_V (\nabla\Phi^*)^2 dV = - \int_{S_1+S_2} \Phi^* E_n dS \quad (74)$$

Где S_1 и S_2 ориентированы внешними нормальными по отношению к активной среде. Потенциал Φ^* был найден нами в разделе 4.1, после тривиальных вычислений, получим:

$$J_1 = -\frac{4\pi E_0^2}{3 \varepsilon_d^*} \left(\varepsilon_m a^3 + \frac{2C^2}{(a+h)^3} \right) (\delta\varepsilon_{N_s} + \delta\varepsilon_{\Delta}) \quad (75)$$

Где ε_d^* - пороговое значение диэлектрическая проницаемость активной среды, а величина C определена в (40). Из выражения (27) найдем:

$$\delta\varepsilon_{N_s} = -\frac{4\pi}{3} \frac{n|d|^2}{(2\Delta^* - i\Gamma)} \delta N_s \quad (76)$$

$$\delta\varepsilon_{\Delta} = \frac{8\pi}{3} \frac{nN_s^*|d|^2}{(2\Delta^* - i\Gamma)^2} \delta\Delta \quad (77)$$

$$\delta\varepsilon_{nl}(\mathbf{r}) = -\varepsilon_d^* \frac{|d|^2 \tau \Gamma}{\Gamma^2 + 4(\Delta^*)^2} |\mathbf{E}(\mathbf{r})|^2 \quad (78)$$

Перейдем к вычислению второго интеграла. На основании теоремы Гаусса-Остроградского:

$$\int_V |\mathbf{E}|^2 (\nabla\Phi^*)^2 dV = - \int_{S_1+S_2} \Phi^* |\mathbf{E}|^2 E_n dS \quad (79)$$

После достаточно громоздких, но простых вычислений, получим:

$$J_2 = \frac{4\pi}{5} \frac{|d|^2 \tau \Gamma}{(\Gamma^2 + 4\Delta^{*2})^2} E_0^2 |E_0|^2 \left(\varepsilon_m a^3 \left[\frac{2}{3} + \left| \frac{\varepsilon_m}{\varepsilon_d^*} \right|^2 \right] + \frac{2C^2 |C|^2}{(a+h)^9} \left[\frac{2}{3} + \frac{4}{|\varepsilon_d^*|^2} \right] \right) \quad (80)$$

Где E_0 характеризует амплитуду поля. Так, потенциал поля внутри металлического шарика: $\Phi_m = E_0 r \cos \theta$. Уравнение $J_1 + J_2 = 0$ комплексно, из него определяются две неизвестные: $|E_0|^2$ и $\delta\Delta$. Отметим, что в виду линейности уравнений величины $\delta\Delta$ и δN_s "одного порядка" малости. Поэтому, построенная нами теория возмущений верна (не нужно учитывать других слагаемых). Приведем конечный результат:

$$|E_0|^2 = \frac{20\pi}{9} n \frac{\Gamma^2}{\tau} \delta N_s \frac{(\gamma' - \gamma'' \frac{\beta'}{\beta''})}{(\alpha' - \alpha'' \frac{\beta'}{\beta''})} \quad (81)$$

$$\delta\Delta = \frac{\Gamma}{2} \frac{\delta N_s}{N_s^*} \left(\frac{\alpha''}{\beta''} \frac{(\gamma' - \gamma'' \frac{\beta'}{\beta''})}{(\alpha' - \alpha'' \frac{\beta'}{\beta''})} - \frac{\gamma''}{\beta''} \right) \quad (82)$$

Где введены следующие обозначения:

$$F = \frac{(\varepsilon_m + 2\varepsilon_d^*)^2}{4(\varepsilon_d^* - 1)^2} \quad (83)$$

$$\alpha = \left[\varepsilon_m \left(\frac{2}{3} + \left| \frac{\varepsilon_m}{\varepsilon_d^*} \right|^2 \right) + 2F|F| \left(1 + \frac{h}{a} \right)^3 \left(\frac{2}{3} + \frac{4}{|\varepsilon_d^*|^2} \right) \right] \frac{\varepsilon_d^*}{(i + \frac{2\Delta^*}{\Gamma})^2} \quad (84)$$

$$\beta = \left[\varepsilon_m + 2F \left(1 + \frac{h}{a} \right)^3 \right] \quad (85)$$

$$\gamma = \left[\varepsilon_m + 2F \left(1 + \frac{h}{a} \right)^3 \right] \left(i - \frac{2\Delta^*}{\Gamma} \right) \quad (86)$$

Штрих и два штриха обозначают соответственно действительную и мнимую части.

В заключение обратим внимание на форму спектра. Пока мы получили, что при увеличении $N_s = N_s^* + \delta N_s$, генерация происходит на одной частоте, но она сдвигается относительно величины Δ^* на $\delta\Delta$. В дальнейшем мы планируем изучить этот вопрос более основательно (ввести в модель шума и получить конечную ширину спектра).

6 Сравнение с экспериментом

В данном разделе мы постараемся выяснить насколько результаты, полученные в рамках рассмотрения нашей модели, согласуются с реальным экспериментом. В работе [1] исследовалась наночастица со следующими параметрами: радиус шарика $a = 7$ нм, толщина оболочки $h = 15$ нм. Диэлектрическая проницаемость оболочки (без учета оптически активных атомов): $\varepsilon_0 = 2.13$ (показатель преломления $n_d = 1.46$). Сама наночастица находилась в воде: $\varepsilon_w = 1.77$ (показатель преломления $n_w = 1.33$).

Будем предполагать, что система обладает высокой добротностью (в эксперименте $Q=13.2$). По сути, это утверждение означает, что мнимые части диэлектрических проницаемостей можно считать много меньше действительных. Тогда, используя выражение (41), мы сможем найти диэлектрическую проницаемость металла, при которой в системе будет существовать связанная мода. Зная зависимость $\varepsilon_m(\omega)$ из работы [3], мы можем найти частоту, на которой происходит резонанс. Описанные вычисления дают значение $\lambda \approx 520$ нм, что находится в хорошем согласии с экспериментом: $\lambda_{exp} \approx 531$ нм.

Экспериментальный спектр представляет из себя узкий пик на частоте генерации. Спектр нашей модели представляет из себя дельта-функцию на той же частоте. Качественное поведение совпадает, но более интересным было бы сравнение ширины спектра при увеличении накачки. К сожалению, пока наша модель не дает никаких предсказаний на этот счет. В дальнейшем мы предполагаем ввести в рассмотрение шумы и получить в рамках этой же модели и форму спектральной линии.

Еще стоит отметить, что в рамках нашей модели при увеличении накачки происходит смещение частоты генерации согласно формуле (82). На данный момент экспериментальные данные на этот счет отсутствуют.

7 Заключение

Подведем итог наших исследований. До данной работы была известна общая идея создания SPASER'a и был создан работающий образец. Мы предложили модель, описывающую работу этого устройства. В рамках нашей модели были получены частота генерации в системе и порог генерации (комплексное соотношение (41)). Этот результат имеет важное практическое значение, так как на его основе можно разработать оптимальное соотношение между параметрами исследуемого объекта для каждой конкретной задачи. Кроме того, мы выяснили картину распределения поля в системе в случае слабой надпороговости и предсказали сдвиг частоты генерации при увеличении мощности накачки (соотношения (81)-(82)). Этот результат еще требует экспериментального подтверждения. Также нами была оценена амплитуда поля внутри шарика в случае сильной надпороговости (соотношение (62)) и выяснен механизм ее установления. Важной частью проведенного исследования является сравнение полученных результатов с экспериментом. Главное достижение на этом фронте состоит в том, что наша модель с хорошей точностью предсказывает частоту генерации. Из недостатков стоит отметить, что наша модель не делает никаких предсказаний на счет формы спектра SPASER'a. В дальнейшем планируется усовершенствовать модель путем введения в рассмотрение шумов с целью изучения формы спектра этого устройства.

Автор благодарен Лебедеву В.В., Вергелесу С.С., Воробьеву П.Е. и Габитову И.Р. за многочисленные обсуждения, советы и исправления. Без их участия работа не была бы написана.

8 Приложение А: Усреднение комплексных векторов

Рассмотрим кусочек оптически активной среды достаточно малого объема. Объем должен быть настолько мал, чтобы поле в нем можно было считать однородным. С другой стороны, в нем должно находиться большое количество оптически активных атомов. У каждого из этих атомов величина \mathbf{d} фиксирована по модулю, но произвольно направлена. Для того, чтобы найти диэлектрическую проницаемость такой среды, нам необходимо научиться усреднять выражения вида:

$$\langle d_i d_j^* \rangle = \langle (d_{i1} + i d_{i2})(d_{j1} - i d_{j2}) \rangle = \langle d_{i1} d_{j1} \rangle + i \langle d_{i2} d_{j1} \rangle - i \langle d_{i1} d_{j2} \rangle + \langle d_{i2} d_{j2} \rangle \quad (87)$$

При условии постоянства модуля $|\mathbf{d}|$, которое записывается:

$$d_i d_i^* = |\mathbf{d}|^2 \Leftrightarrow d_{i\alpha} d_{i\alpha} = |\mathbf{d}|^2 \quad (88)$$

По повторяющимся индексам подразумевается суммирование. Введем индексы, обозначаемые большими латинскими буквами. Каждый такой индекс может принимать шесть значений. Тогда:

$$\langle d_{i\alpha} d_{j\beta} \rangle = \langle d_A d_B \rangle = C \delta_{AB} \quad (89)$$

$$d_A d_A = |\mathbf{d}|^2 \quad (90)$$

Беря свертку в первом выражении ($A = B$), находим $C = \frac{|\mathbf{d}|^2}{6}$. Тогда:

$$\langle d_{i\alpha} d_{j\beta} \rangle = \frac{|\mathbf{d}|^2}{6} \delta_{ij} \delta_{\alpha\beta} \quad (91)$$

И, используя выражение (87), окончательно получаем:

$$\langle d_i d_j^* \rangle = \frac{|\mathbf{d}|^2}{3} \delta_{ij} \quad (92)$$

Для вычисления нелинейной по полю поправки к диэлектрической проницаемости нам нужно вычислять более сложное выражение вида $\langle d_i d_j d_k^* d_l^* \rangle$. Аналогично предыдущему, оно сведется к вычислению:

$$\langle d_A d_B d_C d_D \rangle = C(\delta_{AB} \delta_{CD} + \delta_{AC} \delta_{BD} + \delta_{AD} \delta_{BC}) \quad (93)$$

Беря свертку $A = B, C = D$, найдем:

$$|\mathbf{d}|^4 = C(36 + 6 + 6) \Rightarrow C = \frac{|\mathbf{d}|^4}{48} \quad (94)$$

Окончательный ответ:

$$\langle d_i d_j d_k^* d_l^* \rangle = \frac{1}{12} |\mathbf{d}|^4 (\delta_{ik} \delta_{jl} + \delta_{il} \delta_{jk}) \quad (95)$$

9 Литература

- [1] M.A. Noginov, G. Zhu, A.M. Belgrave, R. Bakker, V.M. Shalaev, E.E. Narimanov, S. Stout, E. Herz, T. Suteewong and U. Wiesner. *Nature*, 460:1110, 2009.
- [2] M.O.Scully and M.Sh.Zubairy *Quantum Optics*. Cambridge University Press, 1997.
- [3] P.B. Johanson, R.W. Christy. *Optical constants of the noble metals*. Phys. Rev. B 6, 4370-4379 (1972).
- [4] Дж.Эберли, Л.Аллен. *Оптический резонанс и двухуровневые атомы*. М.: Мир, 1978.
- [5] А.И.Мамистов, А.М.Башаров. *Nonlinear Optical Waves*. Kluwer Academic Publishers, 1999.
- [6] Л.Д. Ландау, Е.М. Лифшиц. *Электродинамика сплошных сред*. М.: Физматлит, 2005.