Общая физика

УДК 535.4

Рассеяние ультракоротких лазерных импульсов на металлических наночастицах

В. А. Астапенко

Представлен теоретический анализ рассеяния ультракоротких лазерных импульсов на металлических наносферах, помещенных в диэлектрическую среду. На основании развитого подхода в рамках справедливости теории возмущений проведен расчет основных характеристик рассматриваемого процесса как функции параметров задачи. Особое внимание уделено влиянию длительности импульса и фазы несущей по отношению к огибающей на спектр возбуждения рассеяния и величину квантового выхода.

PACS: 42.65.Re

Ключевые слова: ультракороткий лазерный импульс, металлические наносферы, рассеяние излучения, квантовый выход, фазовые эффекты.

Введение

В последнее десятилетие стремительно развивается технология генерации ультракоротких лазерных импульсов фемто- и аттосекундного диапазона длительности с контролируемой формой огибающей [1—3]. В этой связи возникает вопрос о специфических особенностях взаимодействия ультракоротких импульсов с веществом и возможности их практического использования. Среди таких возможностей важное место занимает управление вероятностью фотопроцессов с помощью изменения фазы несущей частоты по отношению к огибающей импульса (CE-фаза — carrier-envelope phase). В англоязычной литературе данный способ управления называется фазовым контролем. Фазовый контроль экспериментально наблюдался во внешнем фотоэффекте с поверхности золотой фольги под действием лазерных импульсов с управляемой CE-фазой [4], а также в работах, посвященных динамике молекулярной изомеризации [5], скорости фотодиссоциации молекул [6], генерации высоких гармоник [7] и в ряде других.

Теория взаимодействия ультракоротких лазерных импульсов с веществом развивалась как на основе численного решения уравнения Шредингера [8] или уравнения для вектора Блоха [9], так и с помощью аналитических методов [10]. В работе [11], например, исследовалась динамика двухуровневой системы, возбуждаемой субцикловым электромагнитным импульсом, на основе комбинации аналитического, пертурбативного и численного подходов.

Астапенко Валерий Александрович, заведующий кафедрой.
Московский физико-технический институт.
Россия, 141700, г. Долгопрудный МО, Институтский пер., 9.
Тел. (495) 408-49-77. E-mail: astval@mail.ru

Статья поступила в редакцию 25 августа 2010 г.

Рассматриваемые в статье металлические наночастицы перспективны для биомедицинских применений в качестве наномаркеров, а также как наносенсоры химического состава, электрического заряда, внешнего электрического поля и т. д. [12]. В отличие от молекул красителей, цвет которых определяется фотопоглощением и люминесценцией, доминирующим фотопроцессом в случае металлических наночастиц является рассеяние излучения. Поэтому установление специфических черт рассеяния ультракоротких лазерных импульсов актуально для разработки физической основы использования наночастиц в атто- и фемтосекундном диапазоне длительностей.

Статья посвящена анализу рассеяния ультракоротких лазерных импульсов на металлических наносферах, помещенных в диэлектрическую матрицу. Рассматривается область интенсивностей лазерного излучения, в которой справедливо описание фотопроцесса в рамках теории возмущений, а также исследуется спектральный диапазон вблизи плазмонного резонанса, который наиболее важен для практических применений металлических наночастиц.

Вероятность фотопроцесса за все время действия ультракороткого импульса

Для относительно длинных лазерных импульсов, когда длительность импульса Δt_p существенно превышает период колебания электромагнитного поля на несущей частоте $T = 2\pi/\omega$ (т. е. $\Delta t_p >> T$), фотопроцессы в рамках теории возмущений обычно описываются с помощью вероятности в единицу времени w. Вероятность в единицу времени удобно выразить через сечение процесса в монохроматическом поле $\sigma(\omega)$ в соответствии с хорошо известной формулой

$$w = \sigma(\omega)\frac{I}{\hbar\omega}, \qquad (1)$$

где I — интенсивность излучения на частоте ω.

Спектральная интенсивность излучения на "текущей" частоте ω' выражается на основе [13] в виде следующего равенства:

$$\frac{dI}{d\omega'} \equiv I(\omega') = \frac{c}{(2\pi)^2}\times$$

$$\times\int_{-\infty}^{\infty}\left\langle E_i(t)E_i(t+\tau)\right\rangle_t \exp(i\omega'\tau)\,d\tau, \qquad (2)$$

где c — скорость света, угловые скобки обозначают усреднение по времени, а по дважды повторяющимся индексам предполагается суммирование.

В реальности распределения $I(\omega')$ имеет конечную спектральную ширину $\Delta\omega \neq 0$. До создания лазеров, генерирующих ультракороткие импульсы, можно было полагать, что $\Delta\omega << \omega$, поскольку $\Delta t_p >> T$. Соответствующее излучение является квазимонохроматическим, для него легко обобщить формулу (1), переписав ее в виде

$$w = \int\sigma(\omega')\frac{I(\omega')}{\hbar\omega'}d\omega', \qquad (3)$$

где $I(\omega')$ — спектральная интенсивность излучения (2).

Использование для описания фотопроцессов вероятности в единицу времени (1), (3) и интенсивности излучения (2) предполагает усреднение по промежутку времени $\Delta t >> T$. Очевидно, что такое усреднение становится неадекватным для ультракоротких импульсов, длительность которых может быть меньше периода на несущей частоте. Поэтому нужно оперировать понятием вероятности процесса за все время действия импульса W и интенсивностью излучения, зависящей от времени $I(t)$. Спектральная интенсивность в этом случае будет даваться формулой, аналогичной равенству (2), в котором отсутствует усреднение по времени:

$$I(\omega',t) = \frac{c}{(2\pi)^2}\int_{-\infty}^{\infty}E_i(t)E_i(t+\tau)\exp(i\omega'\tau)\,d\tau. \qquad (4)$$

Тогда можно формально ввести зависящую от времени вероятность процесса в единицу времени:

$$w(t) = \int\sigma(\omega')\frac{I(\omega',t)}{\hbar\omega'}d\omega', \qquad (5)$$

через которую очевидным образом выражается вероятность процесса W за все время действия импульса излучения (в пределе теории возмущений $W << 1$):

$$W = \int_{-\infty}^{\infty}w(t)\,dt = \int_0^{\infty}\sigma(\omega')\int_{-\infty}^{\infty}\frac{I(\omega',t)}{\hbar\omega'}dt\,d\omega'. \qquad (6)$$

Воспользуемся теперь равенством

$$\int_{-\infty}^{\infty}I(\omega',t)\,dt = \frac{c}{(2\pi)^2}\left|\mathbf{E}(\omega')\right|^2, \qquad (7)$$

где $\mathbf{E}(\omega')$ — фурье-образ напряженности электрического поля в лазерном импульсе.

Соотношение (7) можно получить из определения зависящей от времени интенсивности (4) путем разложения напряженности электрического поля в интеграл Фурье. Подставляя (7) в (6), для вероятности фотопроцесса за все время действия лазерного импульса находим следующее выражение:

$$W = \frac{c}{(2\pi)^2}\int_0^{\infty}\sigma(\omega')\frac{\left|\mathbf{E}(\omega')\right|^2}{\hbar\omega'}d\omega'. \qquad (8)$$

Формула (8) была получена в работе [10] для фотопоглощения в рамках последовательного квантово-механического рассмотрения на основании теории возмущений. В настоящей работе используем выражение (8) для описания рассеяния ультракороткого лазерного импульса. Тогда под величиной $\sigma(\omega')$ нужно понимать спектральное сечение рассеяния излучения $\sigma_{scat}(\omega')$.

Для вероятности рассеяния излучения на заданной частоте ω' за все время действия ультракороткого лазерного импульса из соотношения (8) следует равенство:

$$\frac{dW_{scat}}{d\omega'} = \frac{c}{(2\pi)^2}\sigma_{scat}(\omega')\frac{\left|\mathbf{E}(\omega')\right|^2}{\hbar\omega'}. \qquad (9)$$

Отсюда для дифференциальной по частоте энергии рассеянного излучения имеем:

$$\frac{d\Delta E_{scat}}{d\omega'} = \frac{c}{(2\pi)^2}\sigma_{scat}(\omega')\left|\mathbf{E}(\omega')\right|^2. \qquad (10)$$

В формулах (9) и (10) под частотой ω' понимается частота рассеянного монохроматического излучения в отличие от несущей частоты ультракороткого импульса ω.

Для интегральной энергии рассеянного излучения при воздействии ультракороткого импульса на мишень из равенства (10) следует, что

$$\Delta E_{scat} = \frac{c}{(2\pi)^2}\int_0^{\infty}\sigma_{scat}(\omega')\left|\mathbf{E}(\omega')\right|^2 d\omega'. \qquad (11)$$

Полученные выражения (9)—(11) описывают поглощение ультракороткого импульса с заменой сечения рассеяния на сечение поглощения.

Сечение рассеяния излучения на металлической сфере

Рассмотрим рассеяние ультракороткого лазерного импульса на металлических наносферах, помещенных в однородную среду (матрицу). Для того чтобы воспользоваться полученными в предыдущем разделе формулами, необходимо знать сечение рассеяния излучения на соответствующей мишени. Воспользуемся для этого результатом теории Ми [14], который дает разложение сечения рассеяния на металлической сфере в виде следующего ряда

$$\sigma_{scat}^{(Mie)} = \frac{2\pi c^2}{\varepsilon_m \omega^2} \times$$

$$\times \sum_{n=1}^{\infty} (2n+1) \left\{ \left| a_n(x, mx, m) \right|^2 + \left| b_n(x, mx, m) \right|^2 \right\}, \quad (12)$$

где $x = k r_s = \sqrt{\varepsilon_m} \dfrac{\omega}{c} r_s$ и $m = \sqrt{\varepsilon_s(\omega)/\varepsilon_m}$ — два основных параметра теории; $\varepsilon_s(\omega)$, ε_m — диэлектрические проницаемости материала наносферы и матрицы. Коэффициенты разложения a_n и b_n равны:

$$a_n(x, y, m) = \frac{\psi_n'(y)\psi_n(x) - m\psi_n'(x)\psi_n(y)}{\psi_n'(y)\zeta_n(x) - m\zeta_n'(x)\psi_n(y)}; \quad (13)$$

$$b_n(x, y, m) = \frac{m\psi_n'(y)\psi_n(x) - \psi_n'(y)\psi_n'(x)}{m\psi_n'(y)\zeta_n(x) - \zeta_n'(x)\psi_n(y)}, \quad (14)$$

где

$$\psi_n(z) = z\, j_n(z) = \sqrt{\frac{\pi z}{2}} J_{n+1/2}(z); \quad (15)$$

$$\zeta_n(z) = z\, h_n^{(1)}(z) = \sqrt{\frac{\pi z}{2}} H_{n+1/2}^{(1)}(z) \text{ —} \quad (16)$$

функции, введенные Дебаем;

$j_n(z)$, $h_n^{(1)}(z)$ — сферические функции Бесселя и Ханкеля;

$J_{n+1/2}(z)$ и $H_{n+1/2}^{(1)}(z)$ — функции Бесселя и Ханкеля полуцелого порядка.

Диэлектрическая проницаемость металлической сферы является комплексной величиной. Она может быть выражена через действительную $n_s(\omega)$ и мнимую $\kappa_s(\omega)$ части показателя преломления металла:

$$\varepsilon_s(\omega) = \varepsilon_1(\omega) + i\varepsilon_2(\omega) =$$

$$= \left[n_s(\omega)\right]^2 - \left[\kappa_s(\omega)\right]^2 + 2i\, n_s(\omega)\kappa_s(\omega). \quad (17)$$

Для функций $n_s(\omega)$ и $\kappa_s(\omega)$ используем экспериментальные данные, полученные в работе [15]. Диэлектрическую проницаемость матрицы полагаем действительной и не зависящей от частоты излучения. Использование объемных значений диэлектрической проницаемости для наносферы оправдано, поскольку в работе [12] показано, что такой подход обеспечивает хорошее соответствие с экспериментальными данными для сечения рассеяния излучения на золотых и серебряных наносферах.

Для сечения экстинкции излучения на металлической сфере теория Ми дает:

$$\sigma_{ext}^{(Mie)} = \frac{2\pi c^2}{\varepsilon_m \omega^2} \times$$

$$\times \sum_{n=1}^{\infty} (2n+1) \mathrm{Re}\left\{ a_n(x, mx, m) + b_n(x, mx, m) \right\}. \quad (18)$$

Величина $\sigma_{ext} I_0$ представляет собой мощность излучения, удаляемую из падающего на наночастицу светового луча интенсивности I_0, за счет поглощения и рассеяния. Отношение сечения рассеяния к сечению экстинкции называется *квантовым выходом* $\eta_\sigma = \sigma_{scat}/\sigma_{ext}$. Квантовый выход характеризует относительную величину удаляемой из светового луча мощности, которая идет на рассеяние излучения, т. е. может быть зарегистрирована фотоприемником. Подставляя сечение экстинкции (18) в формулу (11), можно найти, какая энергия будет удалена из лазерного импульса в результате его взаимодействия с металлической наносферой.

Импульс лазерного излучения

Предположим, что напряженность электрического поля лазерного импульса изменяется со временем по закону:

$$\mathbf{E}(t) = \mathbf{E}_0 \exp\left(-t^2/\Delta t^2\right) \cos(\omega t + \varphi), \quad (19)$$

где параметр Δt пропорционален длительности импульса Δt_p;

φ — фаза несущей по отношению к огибающей, которая, как уже было сказано, в англоязычной литературе называется carrier-envelope phase (CE-фаза).

Покажем [10], что между параметром Δt и длительностью импульса гауссовой формы (19) существует соотношение:

$$\Delta t_p = \sqrt{\frac{\pi}{2}} \Delta t \cong 1{,}253\, \Delta t. \quad (20)$$

При выполнении соотношения (20) в пределе длинных импульсов в рамках теории возмущений