

Андерсоновская локализация поверхностных плазмонов (поляритонов) в разупорядоченных пленках

Вадим Маркель

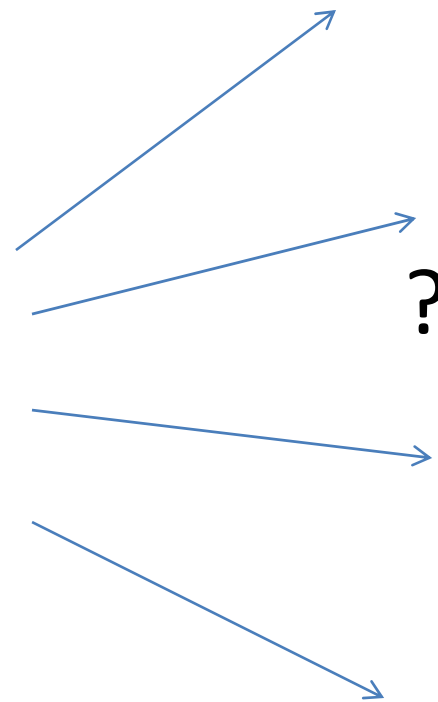
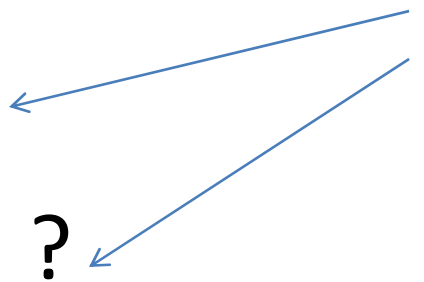
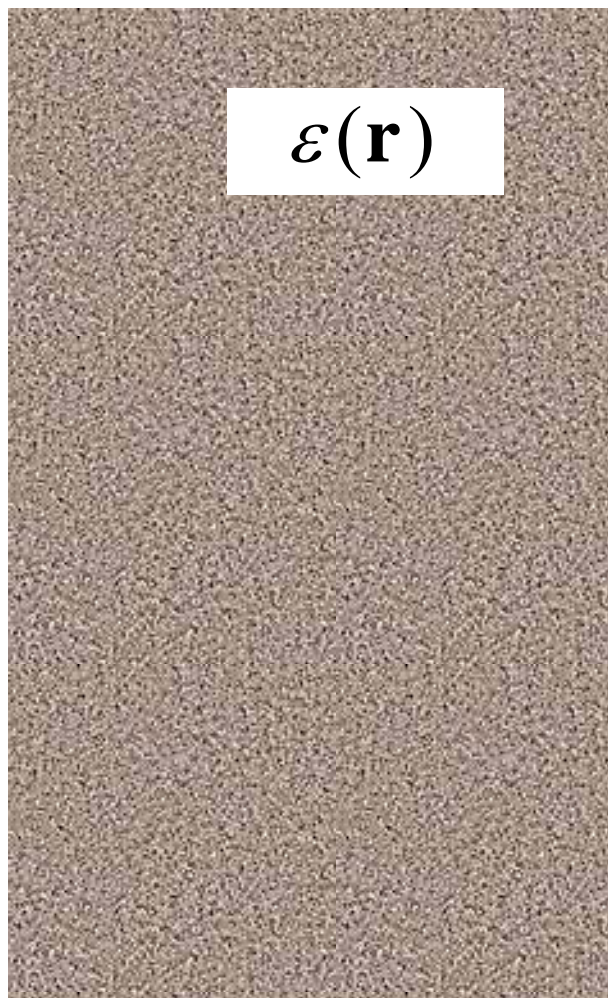
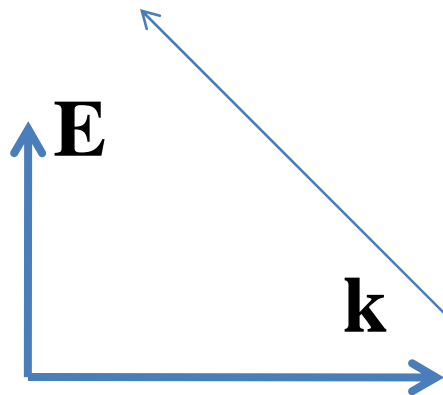
Университет Пенсильвании

Кафедры Радиологии и Биоинженерии

Филадельфия

vmarkel@mail.med.upenn.edu

<http://whale.seas.upenn.edu/vmarkel/>



Физические масштабы:

λ

Δr

$$\ell_s = 1/\mu_s; \quad \mu_s \sim \sigma_s \rho$$

$$\ell_a = 1/\mu_a$$

$$\ell^* = 1/[\mu_a + (1-g)\mu_s]$$

(длина свободного
пробега "фотона")

$$\text{а) } \mu_s \ll \mu_a, \lambda \text{ или } \ell_s \ll L$$

\Rightarrow геометрическая оптика

$$\text{б) } \mu_s \ll \lambda, \ell_s \sim < L$$

\Rightarrow уравнение радиационного
переноса

$$\Downarrow \mu_s \gg \mu_a$$

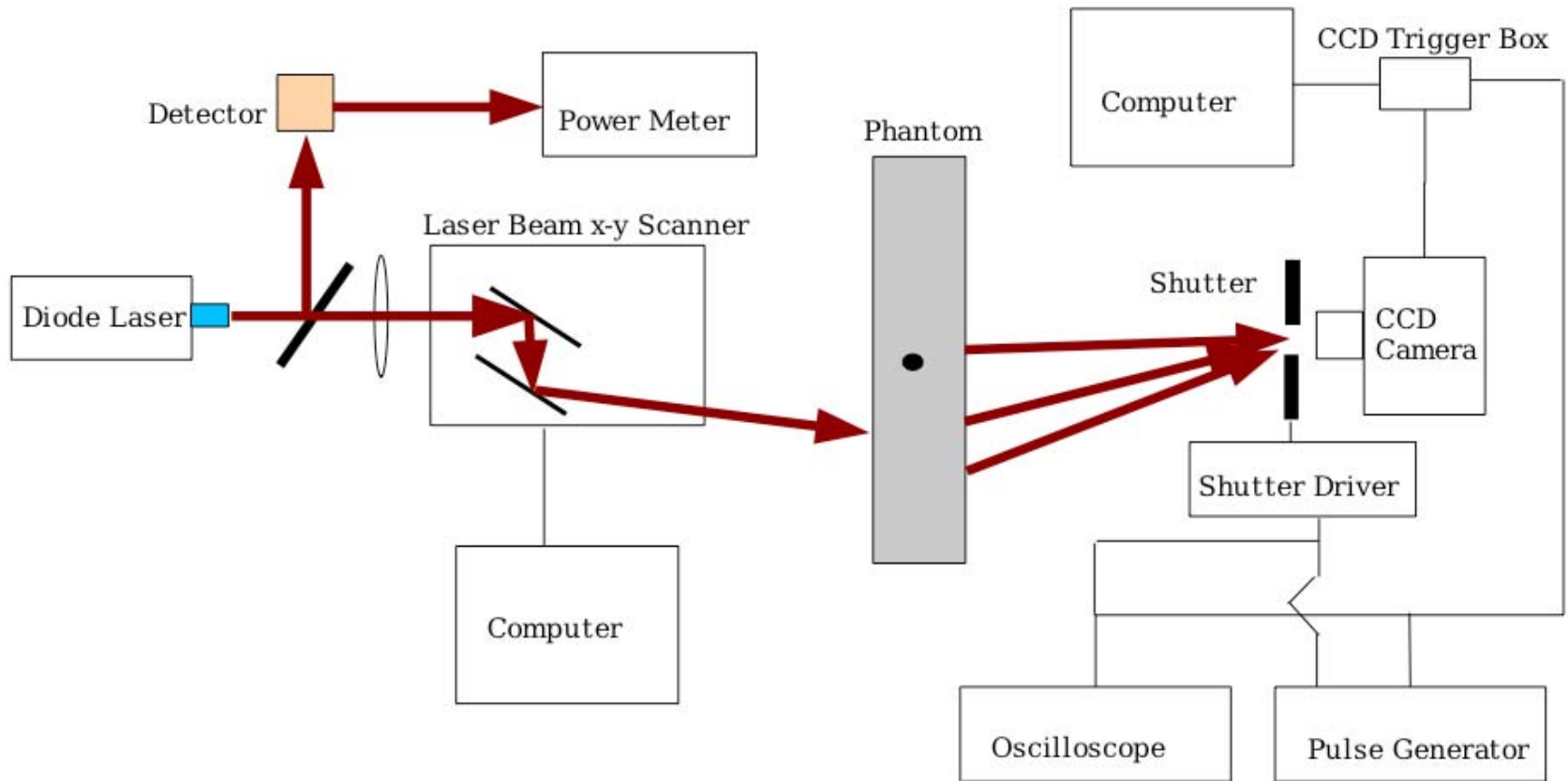
$$\text{в) } \mu_a \ll \mu_s \ll \lambda$$

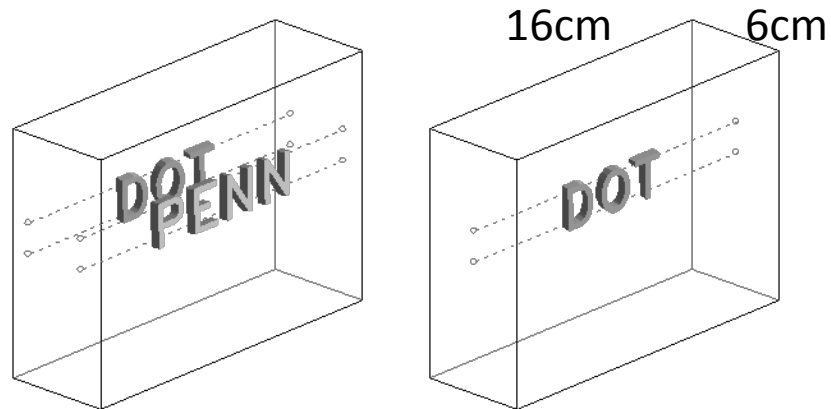
уравнение диффузии

$$\text{г) } \mu_s \gtrsim \lambda, \mu_a \rightarrow 0$$

\Rightarrow ЛОКАЛИЗАЦИЯ

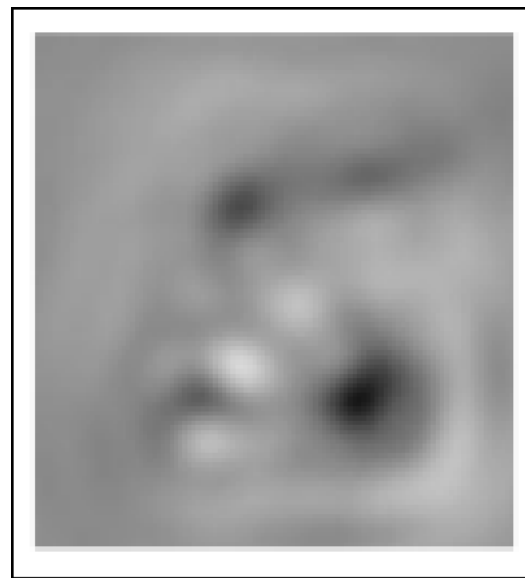
Установка для оптической диффузионной томографии



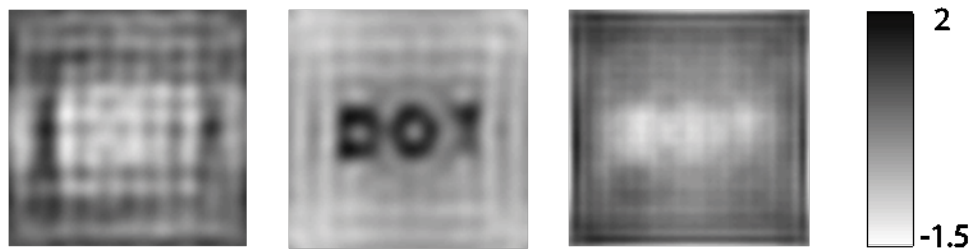


(a)

Куриное крылышко



(b)

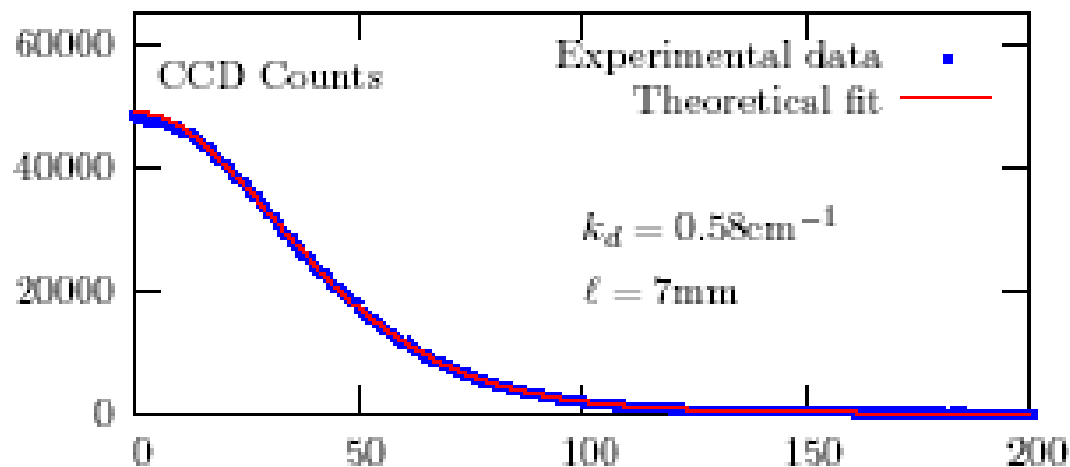


(c)

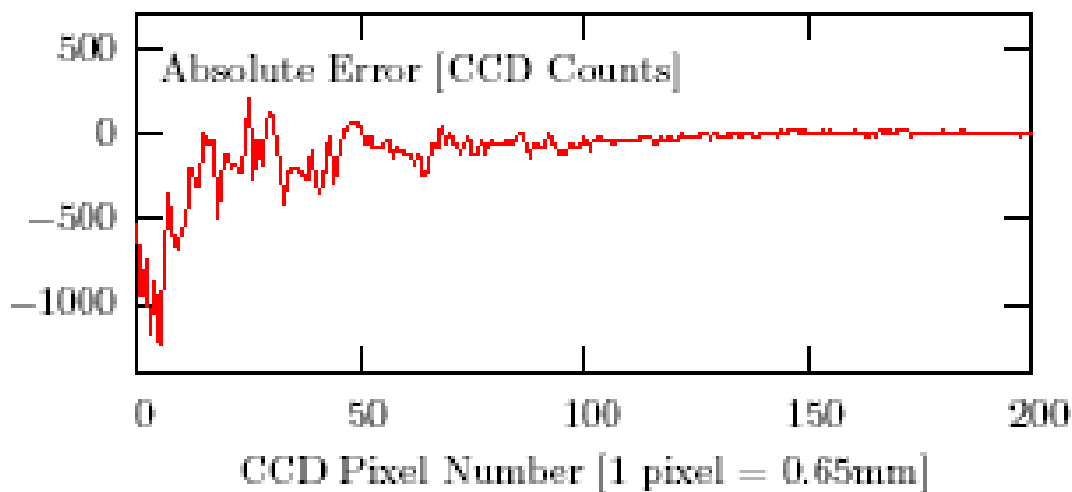
16cm

$\delta\mu_a / \mu_a^{(0)}$

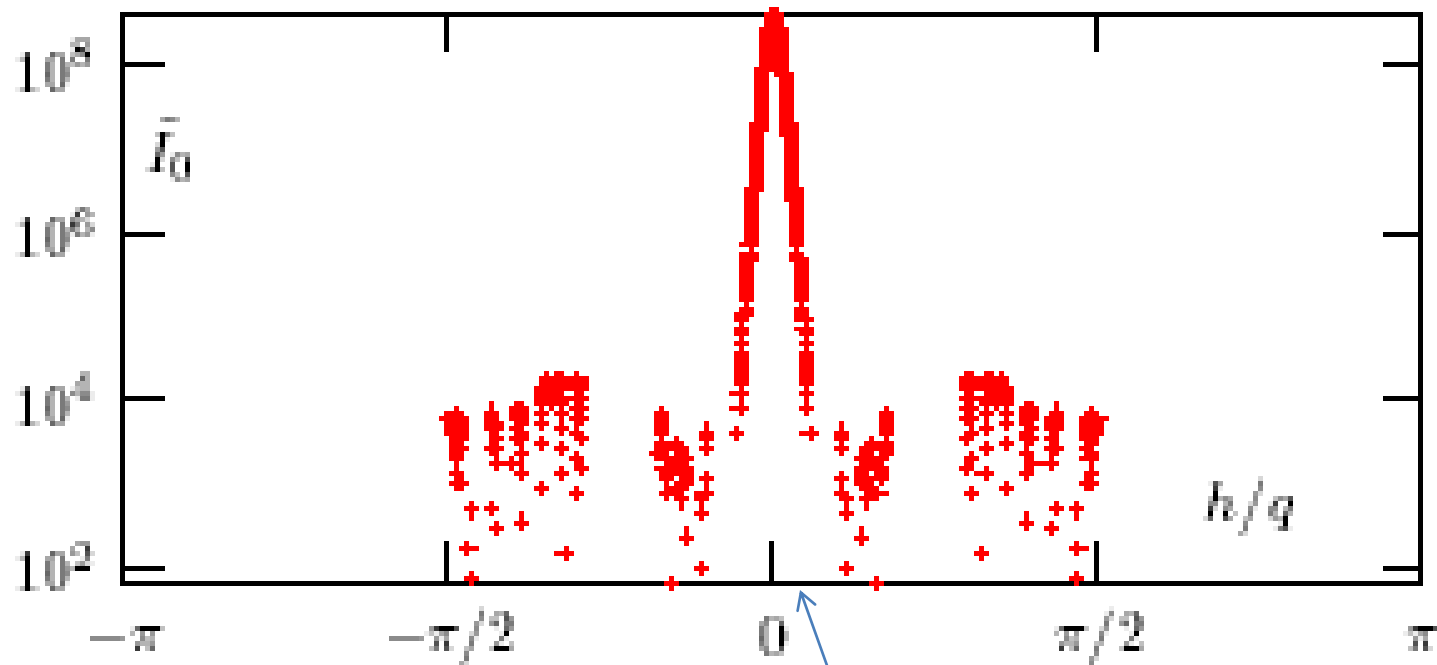
Прохождение коллимированного лазерного пучка (ближний ИК) через 5см ячейку с жировой эмульсией (выглядит как молоко).
Теоретическая кривая получена из уравнения диффузии.



Природа шумов?



Пространственный Фурье-спектр функции пропускания
(график функции двух переменных вдоль произвольной линии,
проходящей через максимум)



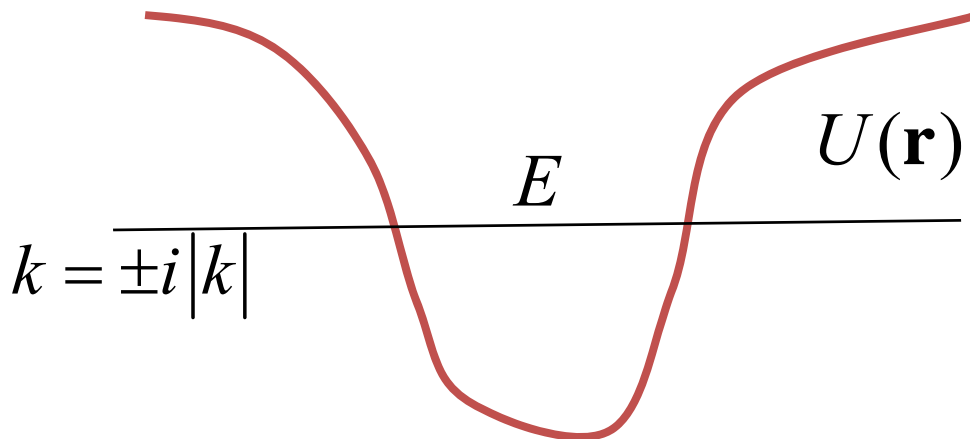
$$q_{\max} = \pi / \Delta x$$

ПЛАН

- 1) Локализация в квантовой механике и в классической электромагнитной теории (фундаментальное физическое различие)
- 2) Алгебра собственных векторов симметричных неэрмитовых операторов
- 3) Связь между локализацией и прохождением волн через случайную среду
- 4) Точка зрения классиков марксизма-ленинизма на локализацию и её последующее разоблачение (точки зрения, а не локализации)
- 5) Численные примеры
 - Радиус гирации и коэффициент участия
 - Коэффициент участия и радиационное время жизни
 - Коэффициент участия и сила осциллятора
 - Сила осциллятора и радиационное время жизни
 - Переход от делокализованных состояний к локализованным
 - Распространение поляритона в разупорядоченных линейных цепочках

1) Локализация волновой функции в квантовой механике и классических электромагнитных волн

Квантовая механика	Классическая электродинамика
$k^2(\mathbf{r}) = \frac{2m[E - U(\mathbf{r})]}{\hbar^2}$	$k^2(\mathbf{r}) = \varepsilon(\mathbf{r}) \frac{\omega^2}{c^2}$



$$\varepsilon(\mathbf{r}) = \varepsilon'(\mathbf{r}) + i\varepsilon''(\mathbf{r})$$



Связанные состояния отсутствуют
Экспоненциальная локализация невозможна

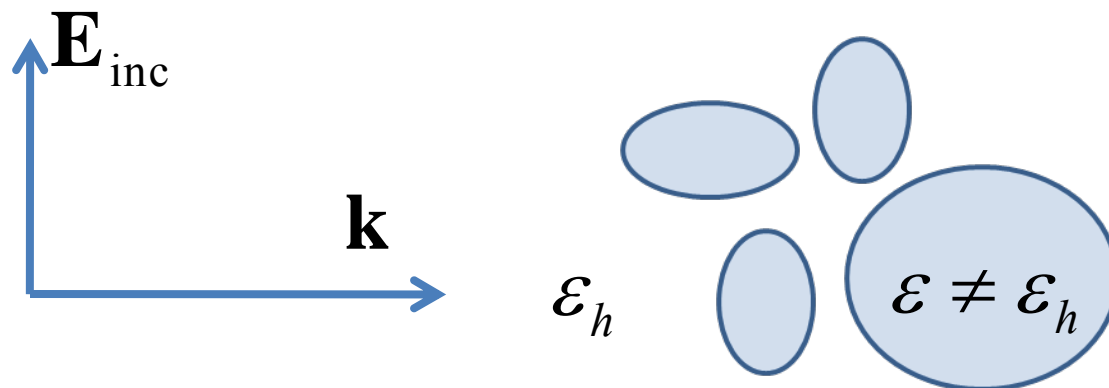
Отсутствие связанных состояний и неэрмитовость гамильтониана

В квантовой механике гамильтониан становится неэрмитовым, если частица может уйти на бесконечность.

«При рассмотрении квазистационарных состояний можно применить следующий формальный метод. До сих пор мы всегда рассматривали решения уравнения Шрёдингера с граничным условием, требующим конечности [на самом деле, экспоненциального спада] волновой функции на бесконечности. Вместо этого будем теперь искать решения, представляющие собой на бесконечности расходящуюся сферическую волну. ... Ввиду того, что такое граничное условие комплексно, нельзя уже утверждать, что собственные значения энергии должны быть вещественными.»

ЛЛ, т.3

В классической ЭМ теории «гамильтониан» неэрмитов всегда



$$\mathbf{P}(\mathbf{r}) = \chi \left[\mathbf{E}_{\text{inc}}(\mathbf{r}) + \int_V G(\mathbf{r}, \mathbf{r}') \mathbf{P}(\mathbf{r}') d^3 r' \right]$$

$$\omega = \text{const}$$

$$\chi = \frac{3\epsilon_h}{4\pi} \frac{\epsilon - \epsilon_h}{\epsilon + 2\epsilon_h} ; \quad G(\mathbf{r}, \mathbf{r}') = g(\mathbf{r} - \mathbf{r}')$$

$$g_{\alpha\beta}(\mathbf{r}) = \left[\left(\frac{k^2}{r} + \frac{ik}{r^2} - \frac{1}{r^3} \right) \delta_{\alpha\beta} + \left(\frac{k^2}{r} + \frac{ik}{r^2} - \frac{1}{r^3} \right) \hat{r}_\alpha \hat{r}_\beta \right] e^{ikr}$$

$$k^2 = \epsilon_h (\omega / c)^2 \quad \text{--- волновой вектор в окружающей среде}$$

Определение собственных состояний ЭМ поля

$$\int_V G(\mathbf{r}, \mathbf{r}') \mathbf{P}_n(\mathbf{r}') d^3 r' = w_n \mathbf{P}_n(\mathbf{r})$$

Связанное состояние поля существует, если

$$\chi^{-1} = w_n$$

Это, однако, невозможно, поскольку

$$\text{Im}[\chi^{-1}] \geq 0$$

$$\text{Im}[w_n] < 0$$

$\mathbf{P}_n(\mathbf{r})$ есть собственные вектора неэрмитового оператора. Они не образуют *ортонормированный* базис.

Как их использовать?

2) Свойства с.в. симметричных неэрмитовых операторов

$G(\mathbf{r}, \mathbf{r}') = G(\mathbf{r}', \mathbf{r})$ -- принцип взаимности

$$\int_V \mathbf{b}(\mathbf{r}) \cdot G(\mathbf{r}, \mathbf{r}') \mathbf{a}(\mathbf{r}') d^3 r d^3 r' = \int_V \mathbf{a}(\mathbf{r}) \cdot G(\mathbf{r}, \mathbf{r}') \mathbf{b}(\mathbf{r}') d^3 r d^3 r'$$

Пусть W - симметричный оператор,

$|P_n\rangle, w_n$ - набор его с.векторов и с.чисел

Тогда:

- 1) $|P_n\rangle$ образуют полный базис, если W не вырожден
- 2) Если W вырожден, его геометрическая размерность может быть меньше алгебраической размерности.

То есть подпространство с.в., соответствующих некоторому вырожденному с.ч., меньше, чем алгебраическая кратность этого с.ч.

3) Такие операторы называются дефектными

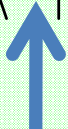
4) Собственные вектора дефектных операторов не образуют полный базис

Пример:

$$A = \begin{pmatrix} 2i & 1 \\ 1 & 0 \end{pmatrix}; \quad D(w) = \left\| \begin{array}{cc} 2i - w & 1 \\ 1 & -w \end{array} \right\| = (w - i)^2$$

$$|P\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} i \\ 1 \end{pmatrix} = \frac{i}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} 1 \\ -i \end{pmatrix}$$

5) Собственные вектора дефектных операторов являются "квазинулевыми":

$$\langle \bar{P} | P \rangle \equiv \sum_n \langle e_n | P \rangle^2 = 0 \quad (|e_n\rangle - \text{любой ортонормированный базис})$$


Квазискалярное произведение

6) Квазиортогональность с.в. симметричных операторов:

$$\langle \bar{P}_n | P_m \rangle = Z_m \delta_{nm} ; \quad Z_m - \text{комплексное число}$$

Если W не дефектен, набор векторов $|\bar{P}_n\rangle$ (полученных комплексным сопряжением всех проэкции $|P_n\rangle$ на любой ортонормированный базис) есть дуальный базис по отношению к $|P_n\rangle$.

7) Если W не дефектен, квазиортогональность можно использовать для решения неоднородных линейных уравнений.

8) Как правило, "дефективность" в физике не встречается.

Так, например, вырождение, связанное с симметрией, не приводит к дефектности. Оператор может оказаться дефектным из-за "случайного" вырождения.

В численных расчётах я с такой ситуацией не сталкивался.

Спектральное решение электромагнитной задачи

$$\mathbf{P}(\mathbf{r}) = \chi \left[\mathbf{E}_{\text{inc}}(\mathbf{r}) + \int_V G(\mathbf{r}, \mathbf{r}') \mathbf{P}(\mathbf{r}') d^3 r' \right]$$

$$|P\rangle = \chi \left[|E_{\text{inc}}\rangle + W |P\rangle \right]$$

$$|P\rangle = \sum_n \frac{|P_n\rangle \langle \bar{P}_n | E_{\text{inc}} \rangle}{\langle \bar{P}_n | P_n \rangle (1/\chi - w_n)}$$

Собственные вектора $|P_n\rangle$ и собственные числа w_n зависят только от геометрии и от электромагнитной частоты ω .

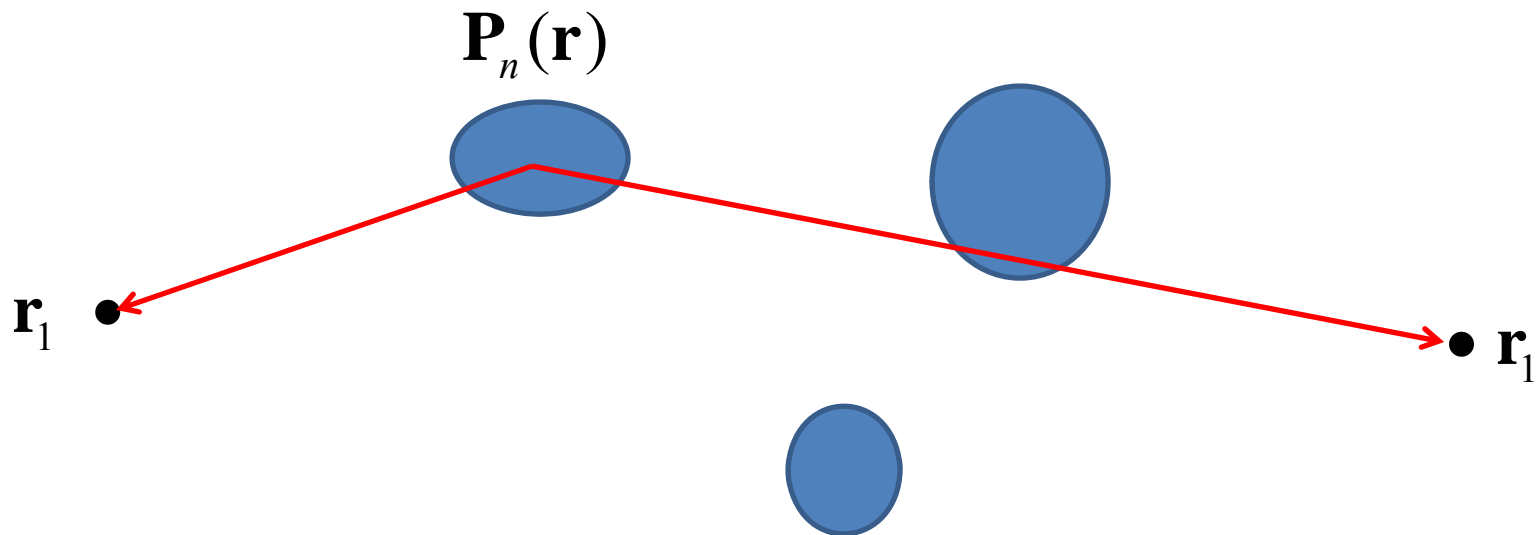
Вся зависимость от материальных свойств среды спрятана в

спектральном параметре
$$z = \chi^{-1} = \frac{4\pi}{3\varepsilon_h} \frac{\varepsilon + 2\varepsilon_h}{\varepsilon - \varepsilon_h}$$

3)Связь между геометрическими свойствами собственных состояний, локализацией и распространением волн в случайных средах

Рассмотрим двухточечную функцию Грина

$$\mathcal{D}(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2) = \sum_n \frac{\langle \mathbf{r}_2 | P_n \rangle \langle \bar{P}_n | \mathbf{r}_1 \rangle}{\langle \bar{P}_n | P_n \rangle (1/\chi - w_n)} = \sum_n \frac{f_n(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2)}{1/\chi - w_n}; \quad f_n(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2) \equiv \frac{\langle \mathbf{r}_2 | P_n \rangle \langle \bar{P}_n | \mathbf{r}_1 \rangle}{\langle \bar{P}_n | P_n \rangle}$$
$$\sum_n f_n(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2) = \delta(\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2)$$



Локализованные и делокализованные моды

Локализованные состояния являются дискретными.

* Вектора $\mathbf{P}_n(\mathbf{r})$ имеют обычную нормировку

$$\int |\mathbf{P}_n(\mathbf{r})|^2 d^3r = 1 \quad \left(\text{в дополнение к квазиортогональности } \int \mathbf{P}_n(\mathbf{r}) \cdot \mathbf{P}_m(\mathbf{r}) d^3r = Z_m \delta_{nm} \right)$$

* Если образец конечный, интеграл сходится в объёме намного меньшем, чем объём образца.

* Экспоненциальная локализация не требуется; достаточно условия

$$\lim_{r \rightarrow \infty} |\mathbf{P}_n(\mathbf{r})| < Ar^{-d/2}$$

* Поскольку локализованные состояния дискретны, их можно пронумеровать дискретным индексом. В качестве такого индекса, выберем точку в пространстве, вокруг которой состояние локализовано.

* Для ЭМ волн, экспоненциальная локализация невозможна в принципе.

Делокализованные состояния принадлежат сплошному спектру

* Такие состояния нельзя пронумеровать дискретной переменной. Вместо этого будем использовать непрерывную переменную q (например, волновой вектор q).

* Нормировка и квазиортогональность:

$$\int |\mathbf{P}_q(\mathbf{r})|^2 d^3r = \infty ; \quad \int \mathbf{P}_q(\mathbf{r}) \cdot \mathbf{P}_{q'}(\mathbf{r}) d^3r = Z_q \delta(q - q')$$

* Если образец конечный, спектр может быть дискретным, но интеграл должен вычисляться по объёму всего образца.

* Поведение на бесконечности:

$$|\mathbf{P}_n(\mathbf{r})| \xrightarrow{r \rightarrow \infty} 1/\sqrt{V}$$

* Делокализованные состояния нельзя связать с какой либо выделенной точкой внутри образца.

Некоторые примеры экспоненциального затухания волн, не связанного с локализацией

- Нерадиационное поглощение
- Эванесцентные волны (в том числе, в фотонных кристаллах)
- Распространение в среде, в которой неоднородности или рассеиватели находятся достаточно далеко друг от друга и многократное рассеяние не возникает

4) Точка зрения классиков марксизма-ленинизма и её разоблачение

M.I. Stockman, L.N. Pandey, and T.F. George, "Inhomogeneous localization of polar eigenmodes in fractals," *Phys. Rev. B* **53**(5), 2183-2186 (1996)

M. I. Stockman, "Inhomogeneous eigenmode localization, chaos, and correlations In large disordered clusters," *Phys. Rev. E* **56**(6) 6494 (1997)

M.I. Stockman, S.V. Faleev, D.J. Bergman, "Anderson localization versus delocalization of surface plasmons in nanosystems: can one state have both characteristics?" *Phys. Rev. Lett.* **87**, 167401 (2001)

D.A. Genov, V.M. Shalaev, A.K. Sarychev, "Surface plasmon excitation and correlation-induced localization-delocalization transition in semicontinuous metal films," *Phys. Rev. B* **72** 113102 (2005)

Первая точка зрения: квазистатическое приближение.

Положим формально $k = 0$ в выражении для функции Грина

$$g_{\alpha\beta}(\mathbf{r}) = \left[\left(\frac{k^2}{r} + \frac{ik}{r^2} - \frac{1}{r^3} \right) \delta_{\alpha\beta} + \left(\frac{k^2}{r} + \frac{ik}{r^2} - \frac{1}{r^3} \right) \hat{r}_\alpha \hat{r}_\beta \right] e^{ikr}$$

Получим эрмитовый гамильтониан и, соответственно, связанные состояния.

В полной аналогии с квантовой механикой, потребуем, чтобы локализованные состояния спадали экспоненциально.

Разоблачение:

- а) Локализация - интерференционное явление. Описывать его, пренебрегая запаздыванием и излучением, нельзя.
- б) В квантовой механике гамильтониан бывает эрмитовым совсем по другой причине. Формальная аналогия между уравнением Шрёдингера и квазистатикой неправомерна.
- в) Даже если мы положим $k = 0$, экспоненциальная локализация невозможна, что следует из уравнения $\int g(\mathbf{r} - \mathbf{r}') \mathbf{P}_n(\mathbf{r}') d^3 r' = w_n \mathbf{P}_n(\mathbf{r})$

Мораль: Экспоненциальное затухание k -та пропускания при увеличении толщины слоя не может быть связано с локализацией.

Вторая точка зрения: использование "радиуса гирации" моды
как критерия локализации

$$\xi_n^2 = \int |\mathbf{P}_n(\mathbf{r})|^2 r^2 d^3r - \left[\int |\mathbf{P}_n(\mathbf{r})|^2 \mathbf{r} d^3r \right]^2$$

Критерий: $\xi_n \ll L$ [L -- линейный размер образца]

Разоблачение:

а) Критерий более сильный чем требуется для локализации.

** Для выполнения критерия требуется $\alpha > 1 + d / 2$

** Для локализации нужно $\alpha > d / 2$

(α - степень затухания с. функции, d - размерность пространства)

б) Критерий $\xi_n \ll L$ всё равно недостаточен для экспоненциальной локализации

в) Численный расчет величины ξ_n нестабилен

Мораль: Надо использовать коэффициент участия (определение
будет дано ниже)

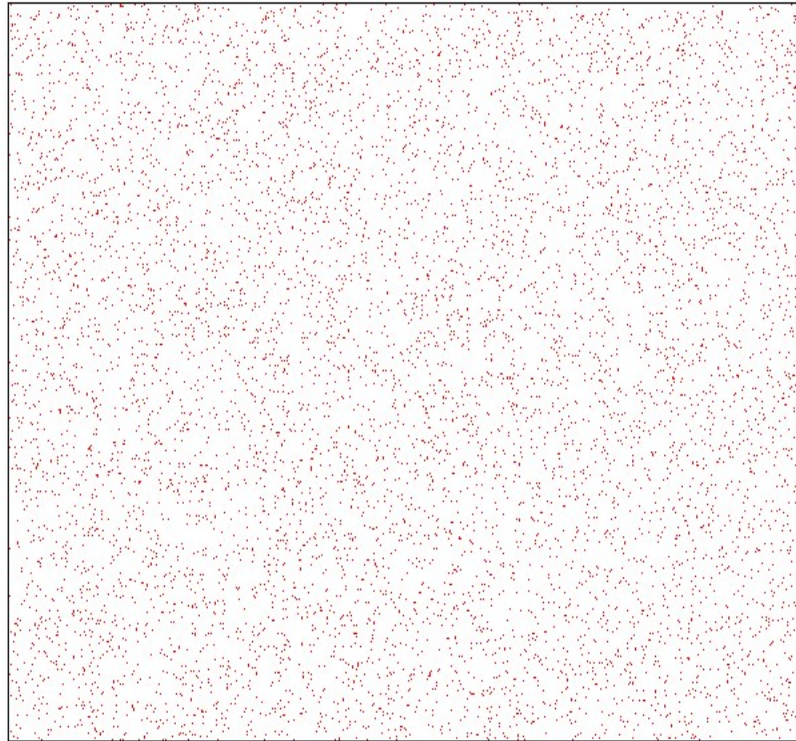
Третья точка зрения: Поскольку локализованные моды спадают экспоненциально, они не могут излучать и, соответственно, не могут быть возбуждены внешним излучением в волновой зоне источника. Такие моды являются абсолютно "темными".

Разоблачение:

Абсолютно тёмных мод не бывает. Надо просто учесть первые исчезающие поправки по k .

Мораль: при прохождении волны через разупорядоченную среду, надо учитывать локализованные моды.

5) Численные примеры



$$L=1000D$$

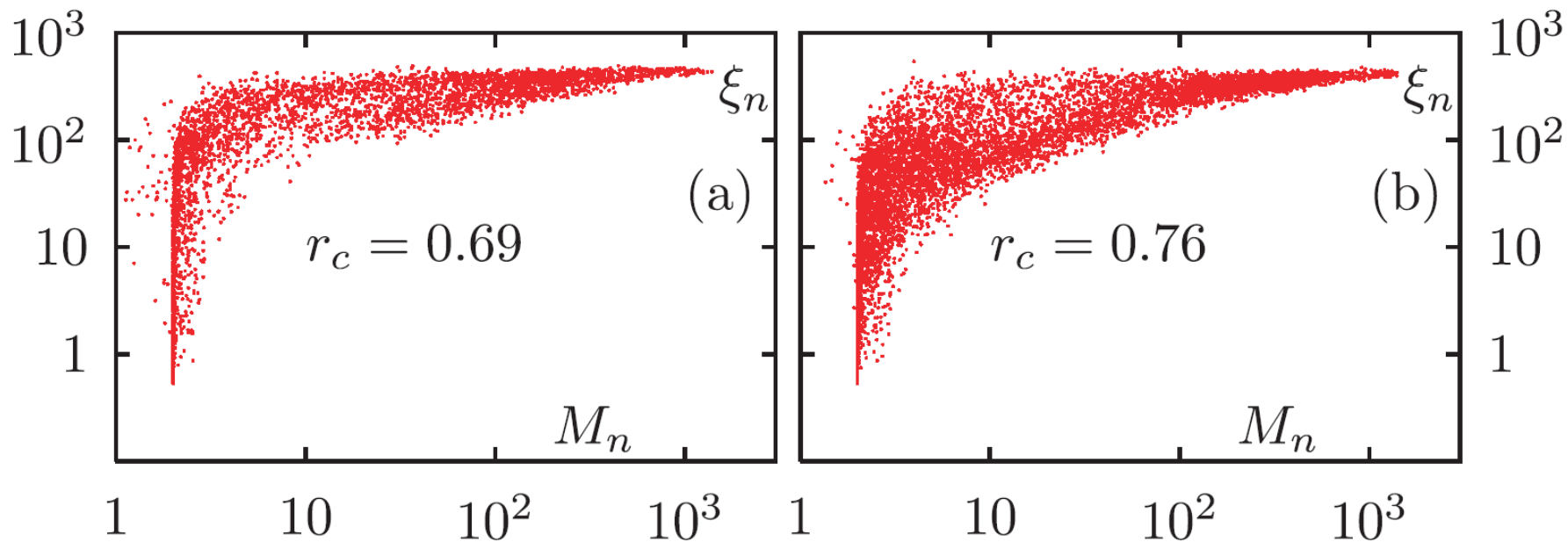
N сферических частиц
диаметра D случайно
разбросаны в квадрате
со стороной L (без
самопересечений)

$$\lambda = 100D$$

$$D \ll \lambda \ll L$$

Радиус гирации и коэффициент участия

$$M_n = \left[\int |\mathbf{P}_n(\mathbf{r})|^4 d^3r \right]^{-1} \leq V \quad [\text{В дискретном случае } 1 \leq M_n \leq N]$$



$$N = 4,000, \lambda = 100D, L = 1000D$$

(a): поперечная поляризация; (b): продольная поляризация

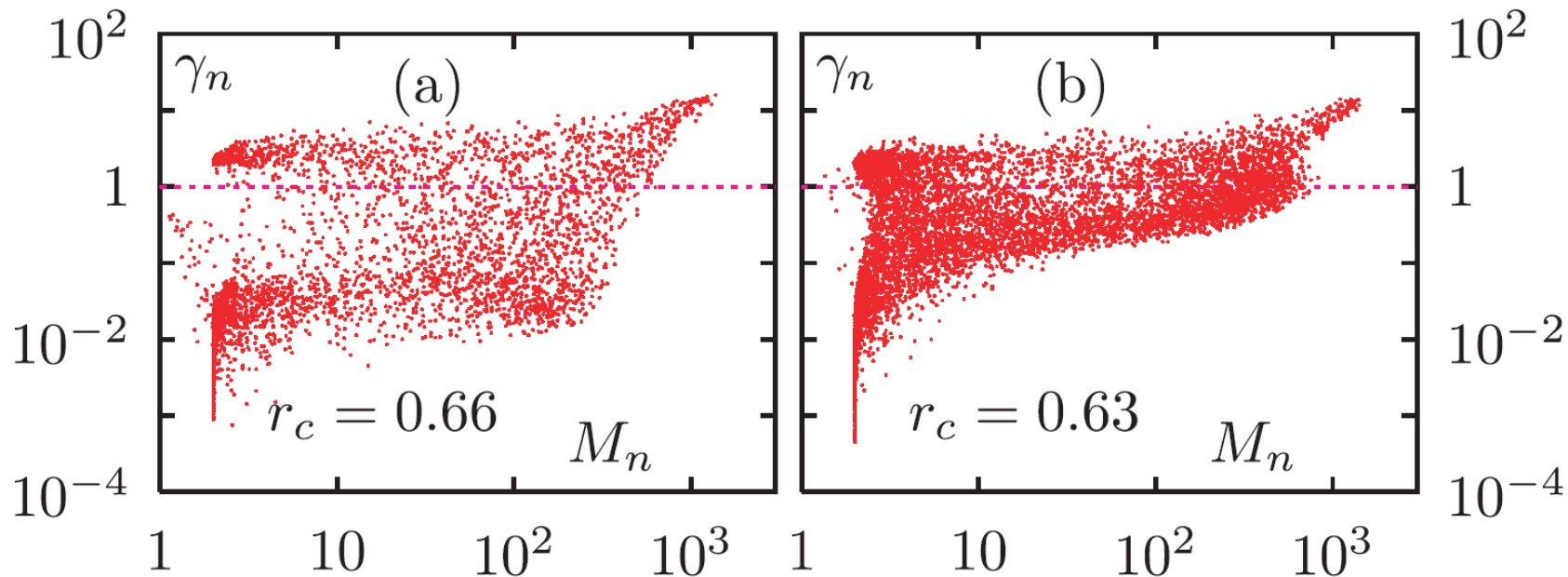
Коэффициент участия и радиационное время жизни

$\gamma_n = \text{Im}[w_n / (2k^3 / 3)] + 1$ -- обратное время жизни собственной моды, отнесённое к аналогичной величине для изолированной частицы (определение дано для дискретного случая)

$\gamma_n \gg N$ -- сверхизлучающее состояние ($\tau_n \sim \tau / N$)

$\gamma_n \sim 1$ -- обычная ситуация

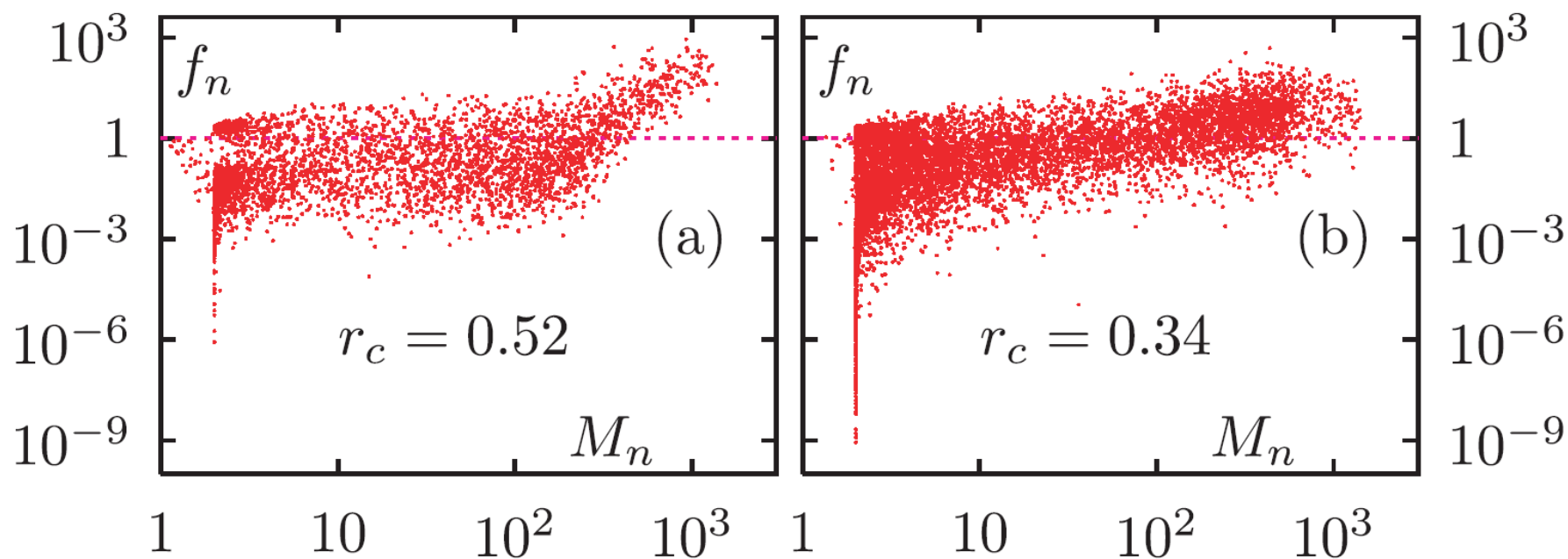
$\gamma_n \ll 1$ -- анти-сверхизлучение



Коэффициент участия и сила осциллятора

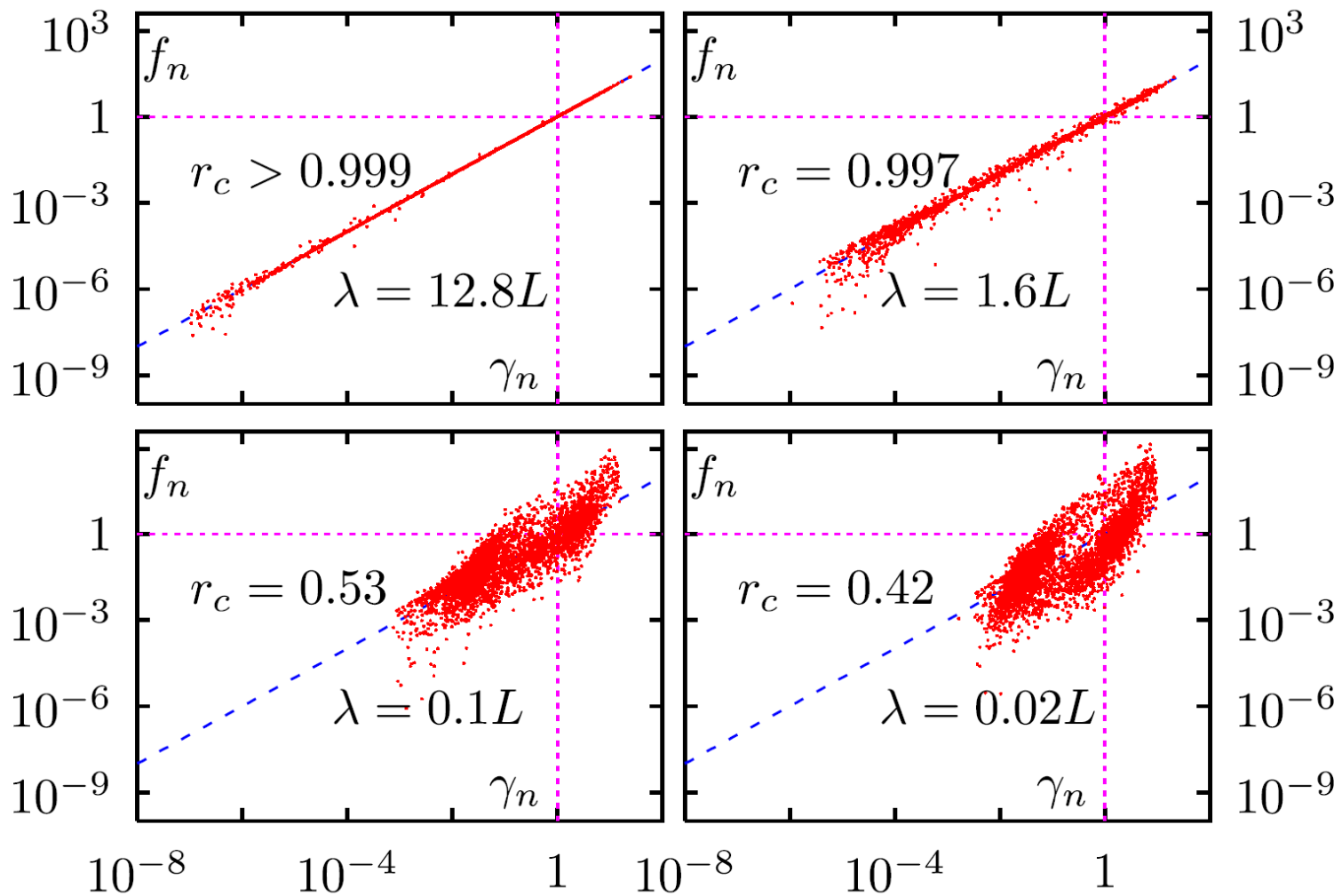
$$f_n^2 = \frac{\langle E_{\text{inc}} | P_n \rangle \langle \bar{P}_n | E_{\text{inc}} \rangle}{|\mathbf{E}_0|^2 \langle \bar{P}_n | P_n \rangle}; \quad \sum_n f_n^2 = N$$

$|E_{\text{inc}}\rangle$ -- вектор внешнего поля (в данном случае, плоская волна)



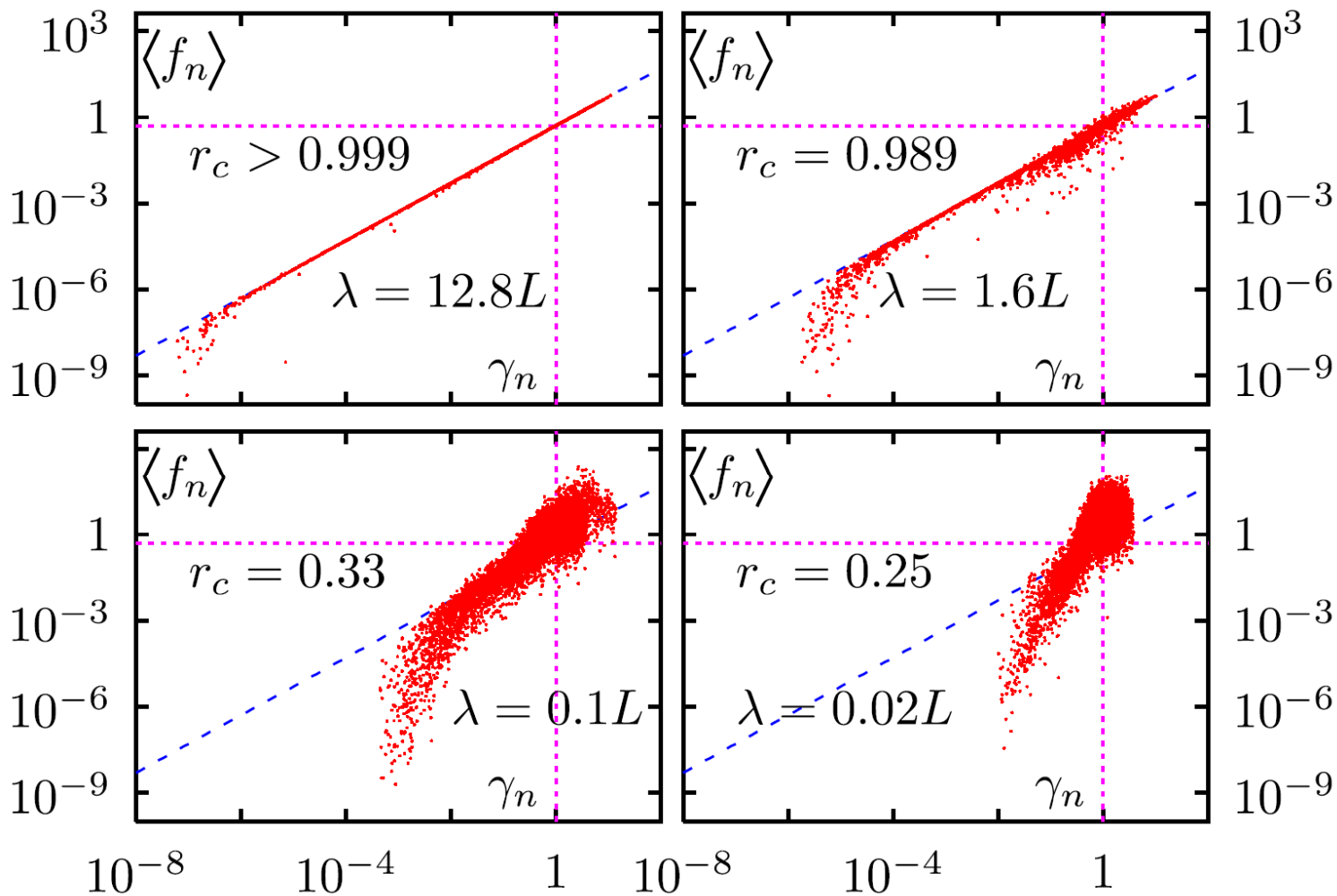
Время жизни и сила осциллятора

а) поперечная поляризация



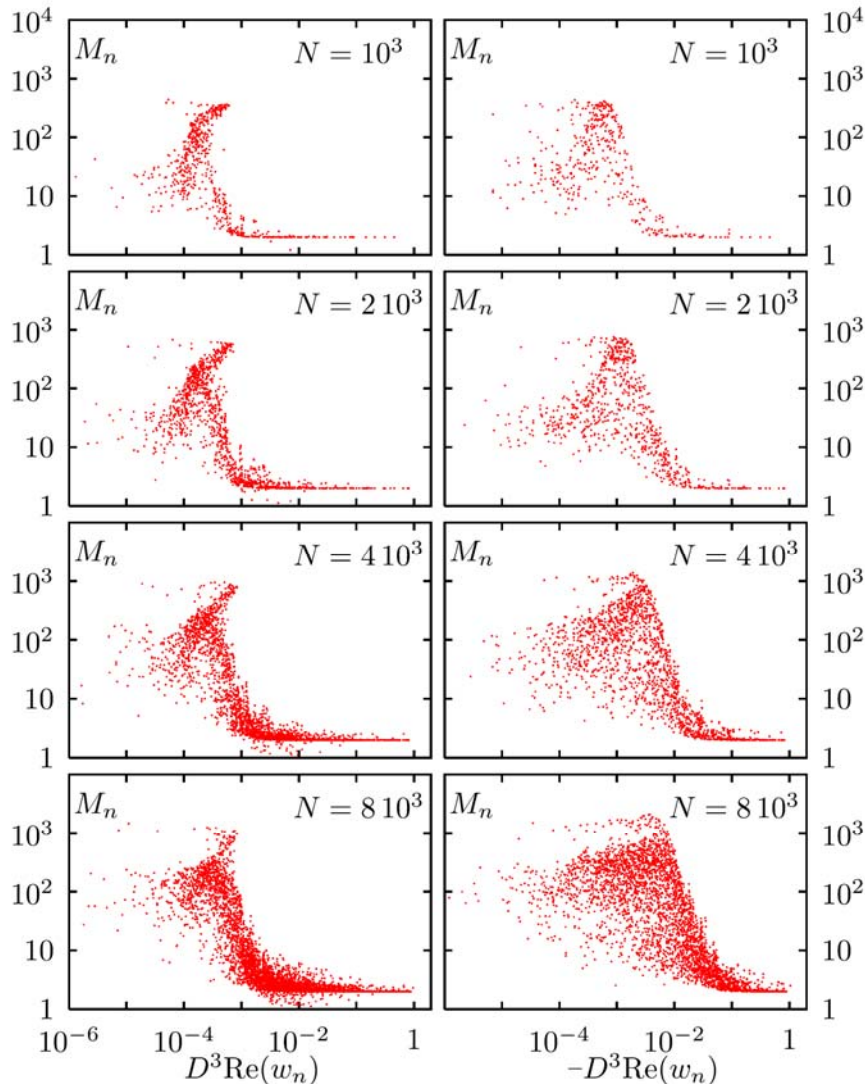
Время жизни и сила осциллятора

б) продольная поляризация



Переход от локализации к делокализации

А) Поперечная поляризация



$$U = -\int \mathbf{P}_{\text{real}} \cdot \mathbf{E}_{\text{real}} d^3 r$$

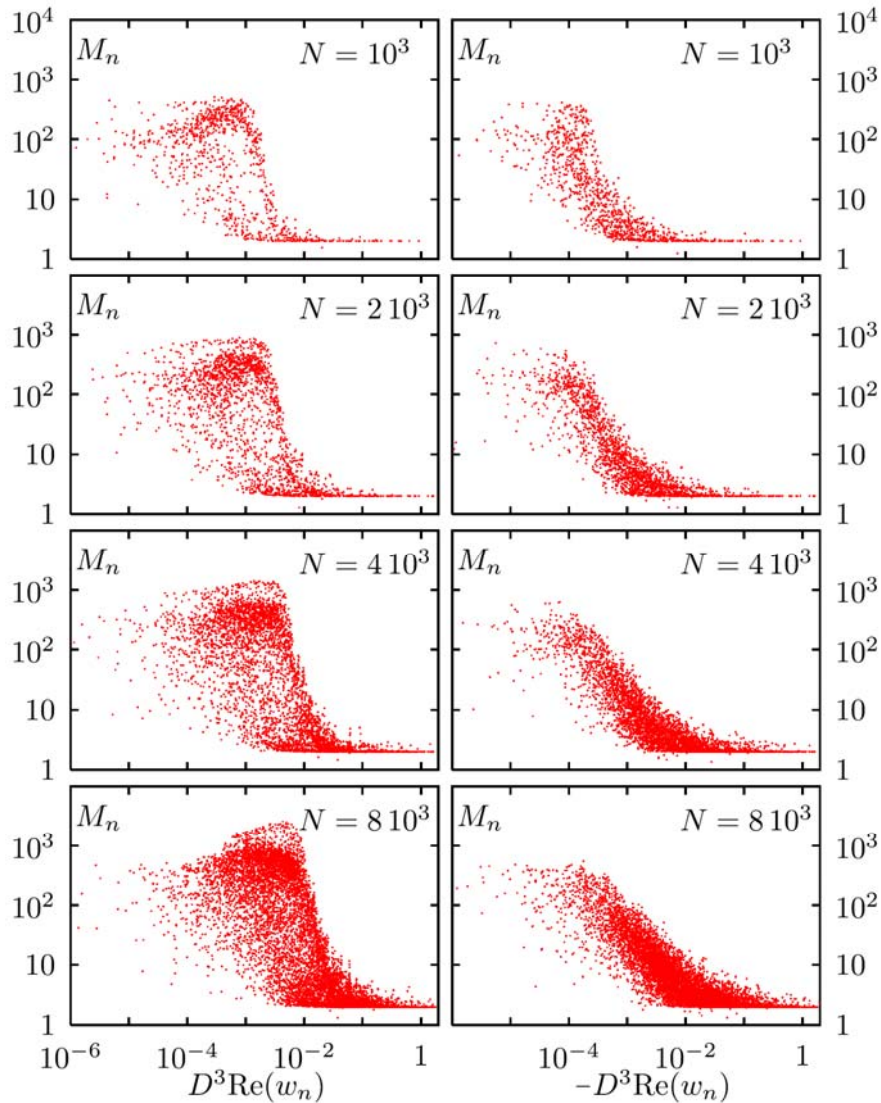
$$\langle U \rangle = -\frac{1}{2} \text{Re} \int \mathbf{P}_{\text{complex}} \cdot \mathbf{E}_{\text{complex}}^* d^3 r$$

$$\mathbf{P}(\mathbf{r}) = A \mathbf{P}_n(\mathbf{r}) \Rightarrow \mathbf{E}(\mathbf{r}) = A w_n \mathbf{P}_n(\mathbf{r})$$

$$\langle U \rangle = -\frac{|A|^2}{2} \text{Re} w_n = |A|^2 U_n$$

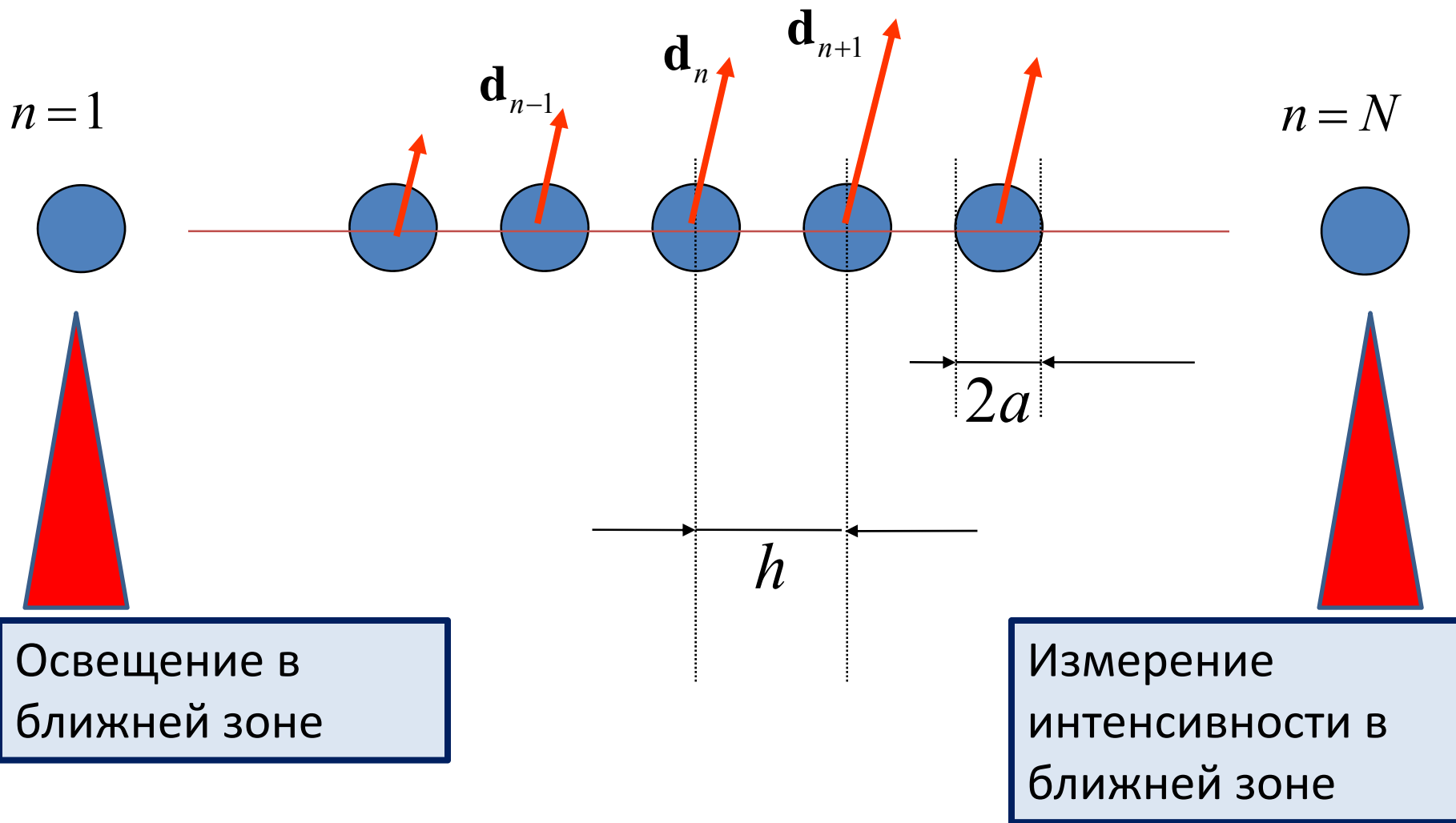
$$U_n \equiv -\frac{1}{2} \text{Re} w_n$$

Переход от локализации к делокализации

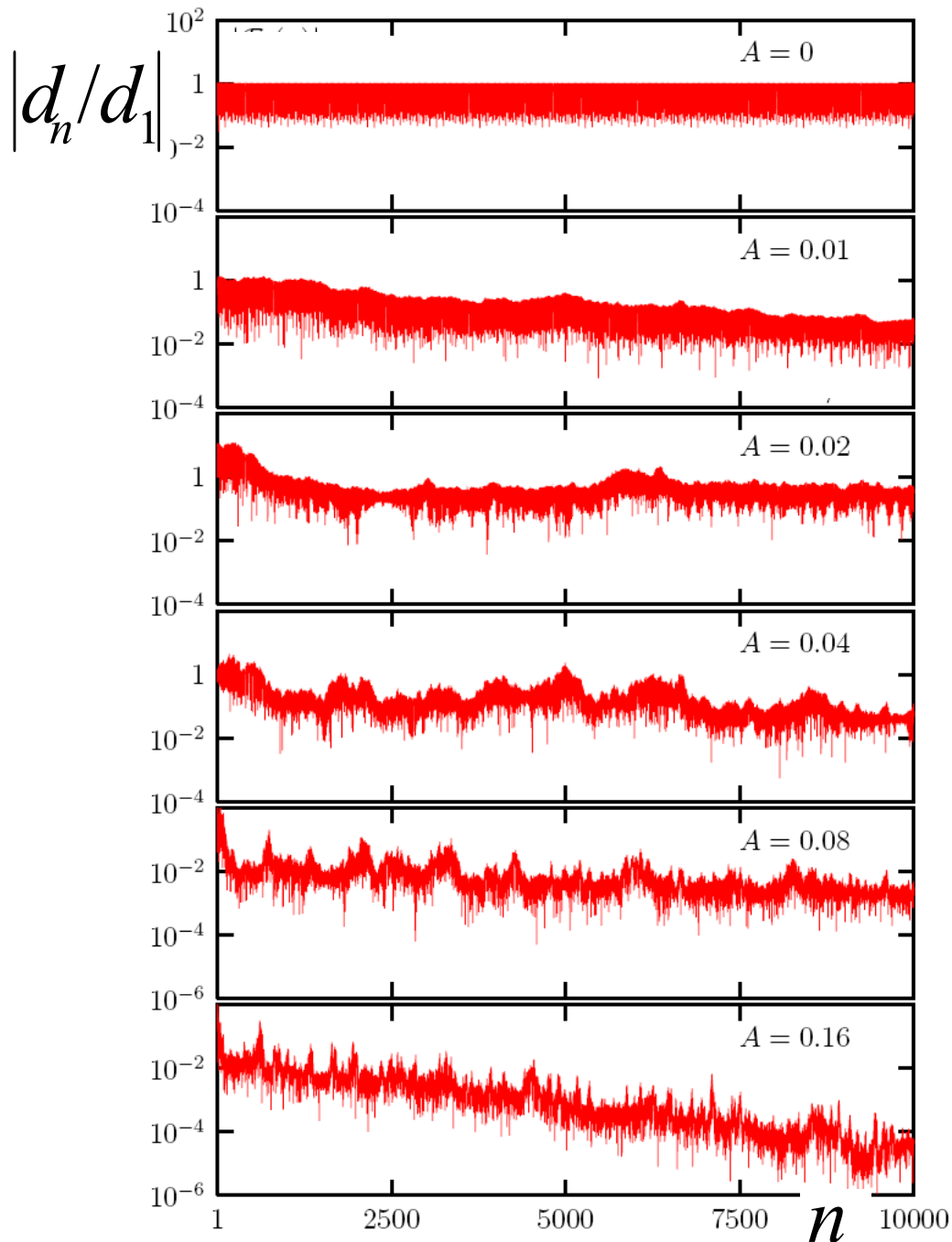


Б) Продольная поляризация

Распространение поляритонов в линейной цепочке



Эффект разупорядоченности цепочки
металлических частиц в отсутствие
омических потерь



Параметры:

$$\omega = \omega_F$$

$$\frac{\gamma}{\omega_F} = 0$$

$$\lambda = \frac{2\pi c}{\omega} = 10h$$

$$h = 4a$$

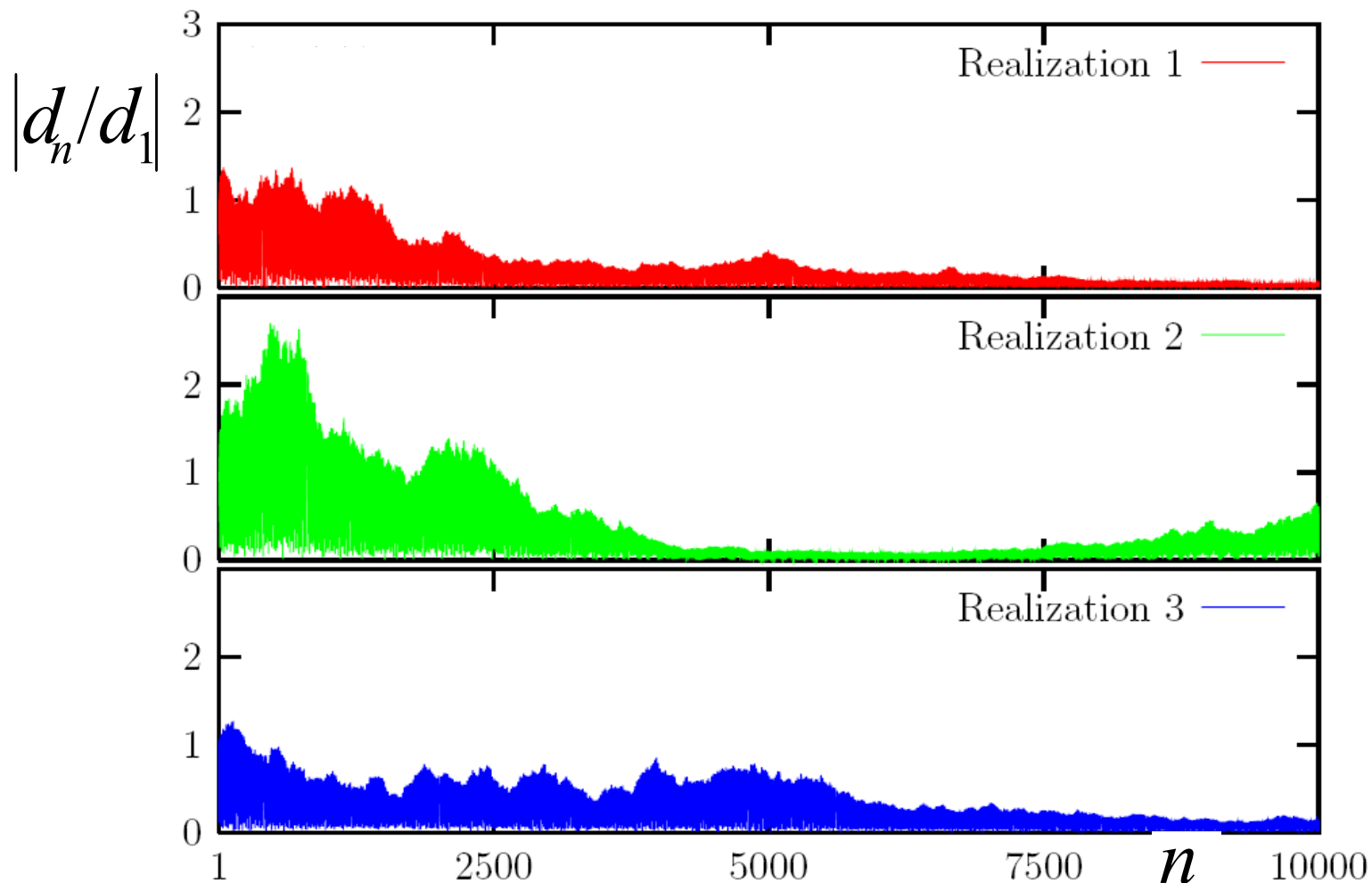
Например:

$$a = 10 \text{ nm}$$

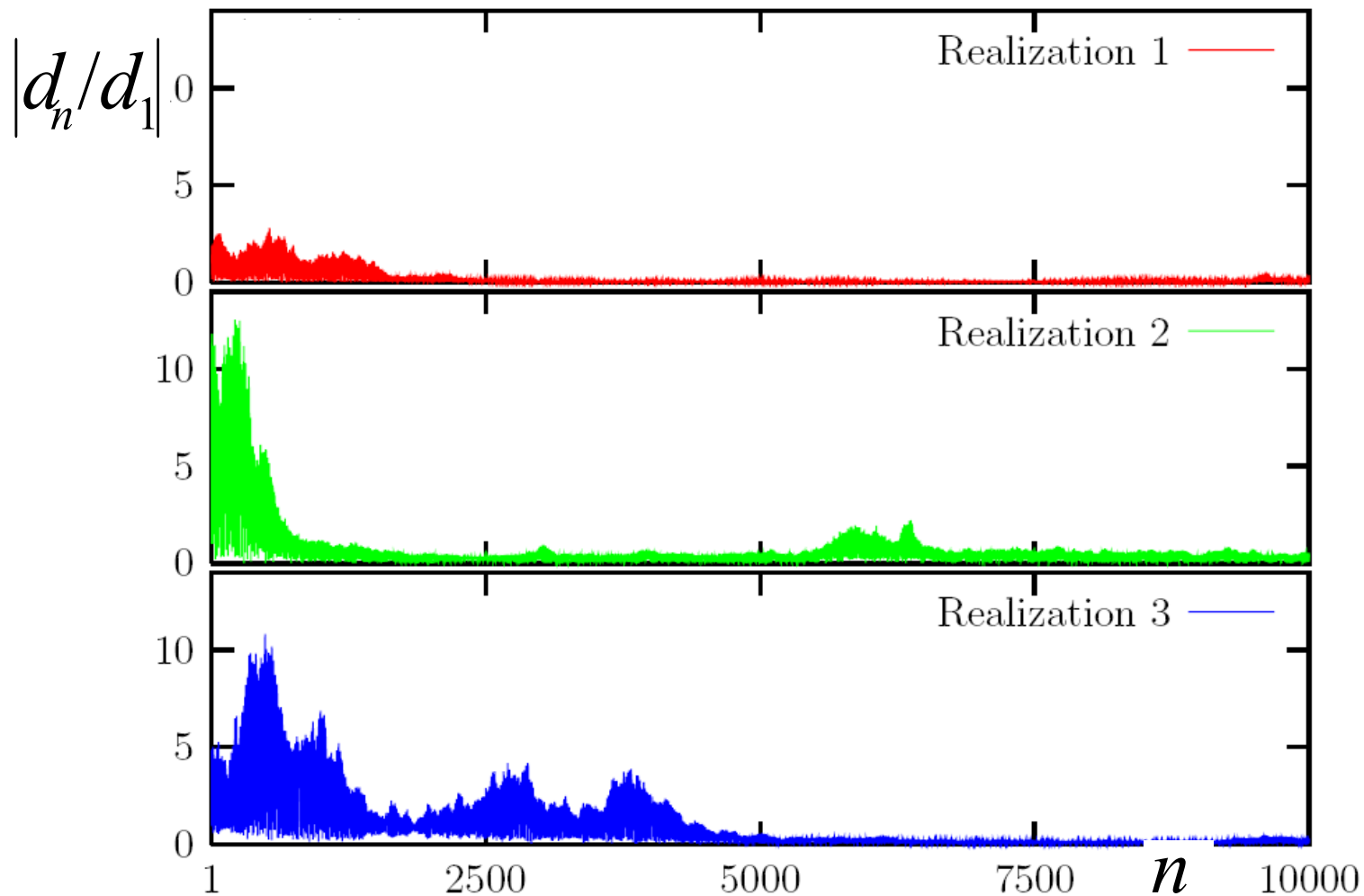
$$h = 40 \text{ nm}$$

$$\lambda = 400 \text{ nm}$$

Относительная амплитуда разупорядоченности $A=0.01$



Относительная амплитуда разупорядоченности $A=0.02$



$$\omega = \omega_F$$

Заключение