

СВЕТОИНДУЦИРОВАННЫЕ ДИФРАКЦИОННЫЕ РЕШЕТКИ НА МЕТАПОВЕРХНОСТЯХ НА ОСНОВЕ ЖИДКОГО МЕТАМАТЕРИАЛА

А. А. Жаров^а, Н. А. Жарова^{б*}

^а *Институт физики микроструктур Российской академии наук
603950, Нижний Новгород, Россия*

^б *Институт прикладной физики Российской академии наук
603950, Нижний Новгород, Россия*

Поступила в редакцию 27 июля 2022 г.,
после переработки 27 июля 2022 г.
Принята к публикации 15 августа 2022 г.

Металповерхности, представляющие собой специальным образом структурированную границу раздела сред, являются одним из ключевых элементов современной «плоской» оптики, поскольку позволяют эффективно манипулировать падающим на них излучением. В настоящей работе предлагается использовать металповерхность, представляющую собой слой жидкости со взвешенными в ней серебряными наночастицами. Концентрация наночастиц перераспределяется под действием пондеромоторных сил со стороны электромагнитного поля, образуя светоиндуцированную дифракционную решетку с параметрами, зависящими от интенсивности падающего излучения. В работе исследована устойчивость однородного по металповерхности распределения наночастиц в поле нормально падающей плоской световой волны, найдены возможные нелинейные стационарные состояния.

DOI: 10.31857/S0044451022120057
EDN: LCDEGZ

1. Появившиеся за последние две декады метаматериалы, представляющие собой искусственные композитные среды, структурированные на субволновом уровне, значительно расширили возможности манипулирования электромагнитным излучением в широком диапазоне частот, от микроволнового до оптического. За счет специального дизайна элементарной ячейки (метаатома) метаматериала, такой среде могут быть приданы электромагнитные свойства, отсутствующие у природных материалов, такие как отрицательная рефракция [1–3], гиперболическая дисперсия [4–6], перестраиваемость, экстремально сильный нелинейный отклик и др. [7–9]. Все эти новые свойства могут оказаться востребованными в широком круге приложений во многих областях нанопотоники, можно, в частности, упомянуть задачи локализации и контроля света на нанометровых масштабах [10, 11], создания наносточников

света для лазерной генерации [12], разработки наноприемников и нанорассеивателей с заранее заданной диаграммой направленности [13] и т.д. В этом контексте необходимо также обратить внимание на жидкие метаматериалы и метакристаллы, которые, не обладая сверхбыстрым откликом, легко перестраивают свои свойства под действием внешних управляющих полей [14–18].

Теоретические и экспериментальные исследования оптических метаматериалов дали толчок к идее планарной оптики, а именно, к использованию плоских металповерхностей (структурированных границ раздела сред) для управления световыми потоками. Это, в свою очередь, привело к бурному развитию так называемой Ми-троники [19], изучающей взаимодействие света с массивами наночастиц в условиях возбуждения электрических и магнитных резонансов Ми. Как было показано в многочисленных работах, металповерхности могут выполнять все те же функции, что и традиционные оптические элементы, обладают сильным нелинейным откликом благодаря высокой добротности резонансов Ми в диэлектрических структурах и возбуждению ква-

* E-mail: zhani@appl.sci.nnov.ru

звсвязанных состояний в континууме [20–22]. В результате планарная оптика на основе метаповерхностей позволяет расширить и технологически упростить использование метаматериалов для широкого круга потенциальных приложений, в частности таких, как разработка сенсоров нового поколения и субволновая микроскопия применительно, например, к задачам химии и медицины.

В данной работе мы предлагаем использовать жидкую метаповерхность в качестве инструмента для манипулирования световыми пучками. Речь идет о тонком в масштабе длины волны слое вязкой жидкости со взвешенными в ней плазмонными (металлическими) наночастицами. Идея состоит в том, что под действием пондеромоторных сил со стороны электромагнитного поля концентрация наночастиц в слое перераспределяется, что, в свою очередь, ведет к самосогласованному изменению структуры отраженной и прошедшей световых волн или, другими словами, к светоиндуцированной дифракции, позволяющей управлять структурами прошедшего и отраженного полей. Несмотря на то, что от такой структуры нельзя ожидать сверхбыстрого отклика (соответствующие характерные времена определяются временем релаксации скорости наночастицы в жидкости), она может оказаться полезной с точки зрения контроля над рассеянием света, а в отдельных случаях фокусировки или дефокусировки световых пучков с управляемым фокусным расстоянием.

2. Итак, рассмотрим тонкий в масштабе длины падающей волны слой жидкости (или геля) толщиной d со взвешенными в ней сферическими металлическими наночастицами (в дальнейшем в качестве материала наночастиц будет рассматриваться серебро). Эффективная диэлектрическая проницаемость такого композита может быть приближенно вычислена по формуле Максвелла-Гарнетта [23]

$$\epsilon_{eff} = \epsilon_l(1 + 3\eta(\epsilon_p - \epsilon_l)/(\epsilon_p + 2\epsilon_l)), \quad (1)$$

где $\epsilon_{p,l}$ — диэлектрические проницаемости частиц и жидкости, η — объемная доля частиц в среде. Будем полагать, что на этот слой, окруженный с обеих сторон диэлектриком с проницаемостью ϵ_d , по нормали падает плоская световая волна ТЕМ-поляризации (см. рис. 1).

Со стороны электромагнитного поля на частицы действует пондеромоторная сила, смещающая частицы в ту или иную сторону. Ниже частицы предполагаются достаточно малыми, так, чтобы при расчете сил, действующих на частицы, можно было бы

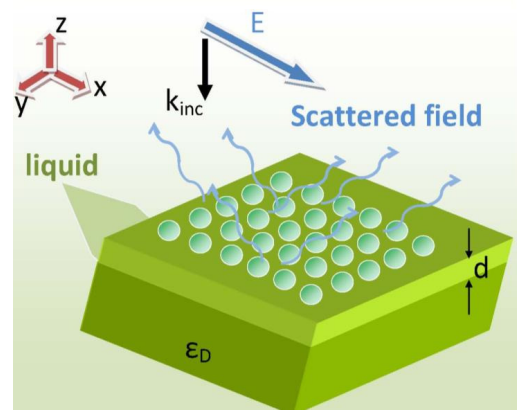


Рис. 1. Постановка задачи: на слой жидкости (диэлектрическая проницаемость ϵ_l) со взвешенными в ней металлическими наночастицами (проницаемость ϵ_p) падает плоская волна. Слой толщиной d заключен между диэлектрическими (проницаемость ϵ_d) обкладками. При достаточно большой амплитуде падающего излучения и подходящих параметрах среды однородное распределение частиц оказывается неустойчивым, их плотность модулируется в поперечном (x) направлении и падающая волна рассеивается на этих неоднородностях

ограничиться дипольным приближением. Усредненная по периоду поля пондеромоторная сила, действующая на дипольную частицу, имеет вид

$$F_i = 1/2(p_k \nabla_i E_k^* + \text{с.с.}), \quad (2)$$

где $\mathbf{p} = \hat{\alpha}\mathbf{E}$ — наведенный внешним полем дипольный момент частицы, \mathbf{E} — напряженность электрического поля, $\hat{\alpha}$ — тензор поляризуемости, с.с. обозначает комплексное сопряжение и по повторяющимся индексам в (2) предполагается суммирование.

Поляризуемость сферической изотропной частицы является скалярной величиной и дается выражением

$$\alpha = 3V_p \epsilon_l (\epsilon_p - \epsilon_l) / (\epsilon_p + 2\epsilon_l), \quad (3)$$

где $V_p = (4/3)\pi a^3$ — объем и a — радиус частицы.

Выражение (2) содержит две компоненты силы: градиентную часть $\mathbf{F}_\nabla \sim \text{Re}(\alpha)\nabla|\mathbf{E}|^2$ и силу «увлечения» (scattering force) $\mathbf{F} \sim \text{Im}(\alpha)\mathbf{S}$, направленную вдоль средней по времени плотности потока энергии \mathbf{S} . В дальнейшем мы будем пренебрегать силой увлечения, поскольку для нормально падающей волны она компенсируется силой со стороны границ слоя, удерживающих жидкость. В латеральном направлении эта сила отсутствует, поскольку отсутствует поток энергии электромагнитного поля в этом направлении.

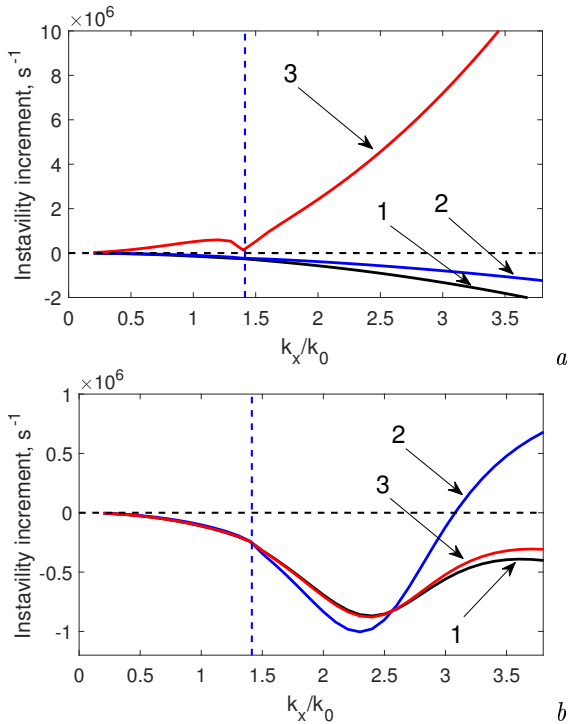


Рис. 2. Инкремент неустойчивости в зависимости от квадрата амплитуды падающей волны (поле нормировано на характерное поле нелинейности) и поперечного волнового числа k_x . Пунктир обозначает границу области неустойчивости, там, где $\delta\eta^{NL} = \delta\eta^L$. Значение диэлектрической постоянной жидкости бралось равным $\varepsilon_l = 6$ (а) и 8 (б). При расчетах использовались следующие значения параметров: $\varepsilon_d = 2$, $\tau = 1.6 \cdot 10^{-7} \text{ c}^{-1}$, $d = 0.1 \text{ мкм}$, $\eta_0 = 0.3$, $V_T = 8.6 \text{ см/с}$, длина волны падающего излучения в свободном пространстве $\lambda = 0.6 \text{ мкм}$

Под влиянием пондеромоторной силы наночастицы в жидкости начинают двигаться, их плотность меняется, возникает градиент давления, и временная динамика концентрации частиц под действием обеих этих сил описывается уравнением диффузионного типа

$$\frac{\partial \eta}{\partial t} + \tau V_T^2 \text{div} (\eta \text{Re}(\tilde{\alpha}) \nabla |\mathbf{E}|^2 - \nabla \eta) = 0. \quad (4)$$

Здесь $\tau = 1/6\pi a \nu$, ν — кинематическая вязкость жидкости и мы ввели новый параметр

$$\tilde{\alpha} = \alpha/V_p \equiv 3\varepsilon_l(\varepsilon_p - \varepsilon_l)/(\varepsilon_p + 2\varepsilon_l)$$

и нормировали электрическое поле в слое на характерное поле нелинейности, которое равно $E_c = \sqrt{k_B T/V_p}$ (k_B — постоянная Больцмана, T — температура). Для краткости будем в дальнейшем считать электрическое поле E такой безразмерной величиной. Уравнение (4) получено на основе

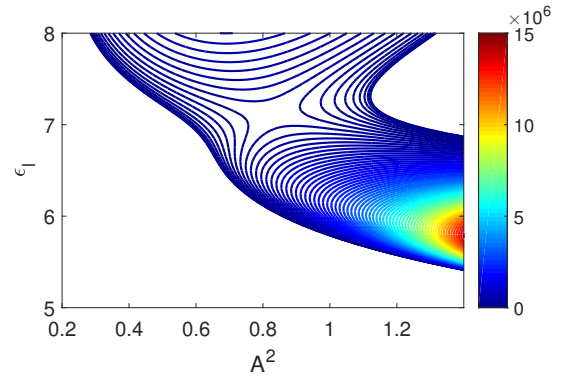


Рис. 3. Инкремент неустойчивости в зависимости от квадрата амплитуды падающей волны и диэлектрической проницаемости жидкости ε_l ; волновое число модуляции $k_x = 4k_0$. Показаны изолинии инкремента для значений $G > 0$; величина инкремента отображается цветом линий. Параметры, использованные в расчетах, см. в подписи к рис. 2. Все пространственные гармоники, возбуждаемые в слое, локализованы, так как для выбранного значения $k_x/k_0 = 4$ они являются нераспространяющимися в диэлектрике с $\varepsilon_d = 2$, длина волны падающего излучения в свободном пространстве $\lambda = 0.6 \text{ мкм}$

гидродинамической модели, которая подробно обсуждается в работах [24–26], где изучались пространственные солитоны в суспензиях наночастиц.

В упомянутых выше работах формирование солитона из светового пучка происходит на некотором расстоянии от входа в среду, и нелинейный процесс требует для развития заметной дистанции. В нашей постановке слой тонкий, причем нельзя при рассмотрении задачи ограничиться однонаправленным распространением светового излучения, т.е. нельзя не учитывать отражение от границ слоя. Эта и другие особенности приводят к существенным различиям в результатах.

Из уравнения (4) видно, что в стационарном состоянии выполняется условие равенства пондеромоторного и теплового давлений:

$$\frac{\nabla \eta}{\eta} \approx \nabla \text{Re}(\tilde{\alpha}) |\mathbf{E}|^2. \quad (5)$$

Соотношение (5) напоминает зависимость возмущения концентрации частиц от интенсивности поля в среде с керровской нелинейностью. Однако в нашем случае нелинейность нелокальная, поскольку в уравнение входят не сами величины, а их производные. Поэтому далее в задаче о развитии модуляционной неустойчивости плоской волны мы увидим, что не сами малые возмущения поля и плотности частиц будут пропорциональны друг другу, но лишь их отклонения от среднего.

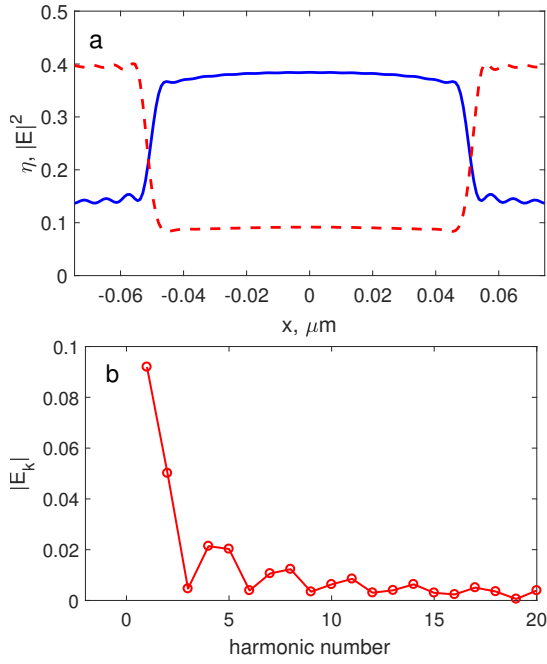


Рис. 4. Стационарное распределение плотности (сплошная линия) и модуля электрического поля в слое (штриховая линия) в нелинейном режиме (а). Модуль спектра электрического поля $|E_k|$ в зависимости от номера пространственной гармоники (от первой до двадцатой) (б). При расчетах использовались следующие значения параметров: $\varepsilon_l = 6$, $k_x/k_0 = 4$, $\varepsilon_d = 2$, $d = 0.1$ мкм, $\eta_0 = 0.3$, квадрат амплитуды падающего излучения $|E_0|^2 = 1.5$, длина волны в свободном пространстве $\lambda = 0.6$ мкм

Для исследования модуляционной неустойчивости плоской волны найдем сначала электрическое поле E_0 внутри слоя, т.е. решим линейную задачу об отражении–прохождении падающей плоской волны на слой с постоянной диэлектрической проницаемостью ε_{eff} (1), полагая в этой формуле постоянной плотность частиц $\eta = \eta_0$.

Следующий шаг состоит в том, что мы зададим малое относительно η_0 возмущение концентрации $\delta\eta^L = \mu \cos(k_x x)$ и решим линейную задачу о рассеянии плоской волны на таком модулированном слое с учетом граничных условий и условий излучения для рассеянного поля¹⁾. Электрическое поле E в слое окажется также промодулированным с тем же характерным масштабом, причем из условия малости параметра $\mu/\eta_0 \ll 1$ и линейности задачи

$$E = E_0 + \delta E^L \equiv E_0 + \beta \mu \cos(k_x x)$$

¹⁾ Следует отметить, что рассеяние поля на возмущениях концентрации наночастиц в жидкой метаповерхности происходит только в ТМ-поляризации.

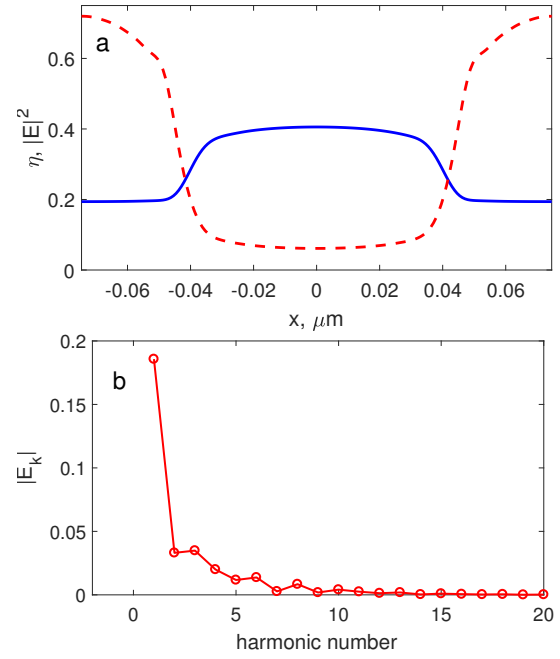


Рис. 5. Стационарное распределение плотности (сплошная линия) и модуля электрического поля в слое (штриховая линия) в нелинейном режиме (а). Модуль спектра электрического поля $|E_k|$ в зависимости от номера пространственной гармоники (от первой до двадцатой) (б). При расчетах использовались следующие значения параметров: $\varepsilon_l = 8$, $k_x/k_0 = 4$, $\varepsilon_d = 2$, $d = 0.1$ мкм, $\eta_0 = 0.3$, квадрат амплитуды падающего излучения $|E_0|^2 = 1.5$, длина волны в свободном пространстве $\lambda = 0.6$ мкм

(с некоторым, в общем случае комплексным, коэффициентом β , который находится из решения задачи рассеяния).

Изменение электрического поля в свою очередь влияет на концентрацию частиц, возмущение которой есть $\delta\eta^{NL} = \eta - \eta_0$, и второй шаг процедуры использует уравнение (5). Учитывая условие сохранения числа частиц на периоде структуры, $\langle \eta \rangle = \eta_0$ (угловые скобки обозначают усреднение по x), найдем из (5)

$$\delta\eta^{NL}/\eta_0 = \exp(\text{Re}(\tilde{\alpha})|E_0 + \delta E^L|^2) - \langle \exp(\text{Re}(\tilde{\alpha})|E_0 + \delta E^L|^2) \rangle.$$

Учитывая малость $|\delta E^L/E_0|$, получаем окончательно

$$\delta\eta^{NL}/\eta_0 = 2\mu \cos(k_x x) e^{\text{Re}(\tilde{\alpha})|E_0|^2} \text{Re}(\tilde{\alpha}) \text{Re}(\beta^* E_0).$$

Если окажется, что $\delta\eta^{NL} > \delta\eta^L$, то возмущения концентрации будут неустойчивыми и начнут возрастать. Это условие совпадает с критерием возбуждения систем с положительной обратной связью, где

неустойчивость развивается, если коэффициент обратной связи (здесь $\delta\eta^{NL}/\delta\eta^L$) больше единицы.

Описанная процедура использовалась для численного нахождения порога неустойчивости и ее инкремента. Однако для тонкого слоя оказывается возможно решить задачу дифракции на модулированном слое аналитически, т.е. найти функциональную зависимость β от параметров, результатом чего является соотношение

$$\beta = id\alpha \frac{\sqrt{\varepsilon_d - \kappa^2}}{\varepsilon_d^{3/2}} \left(1 - \frac{\varepsilon_{eff}}{2\kappa^2}\right) E_0, \quad (6)$$

где мы ввели $\kappa = k_x/k_0$. Таким образом, порог неустойчивости определяется условием

$$G \equiv e^{\text{Re}(\tilde{\alpha})|E_0|^2} \text{Re}(\tilde{\alpha})|E_0|^2 \text{Re}(\beta) > 1. \quad (7)$$

Зная надпороговость, т.е. величину

$$G - 1 = \delta\eta^{NL}/\delta\eta^L - 1,$$

из уравнения (4) можно найти инкремент неустойчивости

$$\gamma \approx \tau V_T^2 k_x^2 (G - 1).$$

Возможность развития модуляционной неустойчивости существенно зависит (при фиксированной частоте падающего излучения) от параметров ε_l и k_x .

Зависимость от k_x иллюстрируется рис. 2*a, b*, на котором приведены значения инкремента неустойчивости, рассчитанные для величин $\varepsilon_l = 6$ (*a*) и 8 (*b*). При фиксированной длине волны $\lambda = 0.6$ мкм (диэлектрическая проницаемость серебра $\varepsilon_p = -12.7 + 1.1i$) поляризуемость наночастиц оказывается положительной, $\text{Re}(\alpha) = 8.4992$, в случае (*a*) и отрицательной, $\text{Re}(\alpha) = -5.5385$, в случае (*b*); эффективная диэлектрическая проницаемость смеси (ее действительная часть) также является положительной для случая (*a*) и отрицательной для случая (*b*).

На рис. 3 приведены зависимости, аналогичные зависимостям на рис. 2. Отличие лишь в том, что инкремент неустойчивости рассчитан для постоянного $k_x = 4k_0$ и меняющегося значения ε_l . Интересно отметить, что область неустойчивости ограничена по интенсивности не только снизу, но и сверху (см. также рис. 2*b*). Очевидно, это связано с сильно нелинейной зависимостью $\sim \text{Re}(\tilde{\alpha})|E_0|^2 \exp(\text{Re}(\tilde{\alpha})|E_0|^2)$ при отрицательных $\tilde{\alpha}$ (см. аналитическую формулу для порога (7)).

3. Нелинейная стадия неустойчивости и формирование нелинейного стационарного профиля концентрации могут быть смоделированы описанной

выше интерполяционной процедурой. Отличие от расчета линейной стадии неустойчивости состоит в том, что эволюция спектра поля учитывает 55 пространственных гармоник вместо трех, а интерполяция становится многошаговой с последовательным постепенным изменением концентрации частиц и расчетом дифракционной задачи на этом профиле концентрации.

На рис. 4 и 5 приведены результаты расчета стационарного нелинейного решения задачи.

Различие между вариантами, представленными на рис. 4 и 5 состоит в том, что в первом случае $\text{Re} \varepsilon_{eff}$ — положительная величина, а во втором — отрицательная. Однако и в том, и в другом случае частицы группируются в области слабого поля.

Следует отметить, что полученные в наших расчетах стационарные нелинейные структуры имеют фактически ступенчатый профиль показателя преломления. Таким образом можно формировать дифракционную решетку, контролируя ее период за счет небольшой затравки в спектре падающей плоской волны, и использовать эту решетку для дифракции пробных волн на других частотах.

4. В заключение, рассмотрено взаимодействие света с жидкой метаповерхностью, представляющей собой тонкий слой суспензии металлических наночастиц. Исследована устойчивость однородного распределения наночастиц на метаповерхности. Найден условия возникновения неустойчивости, приводящей в конечном счете к образованию периодических структур (светоиндуцированных дифракционных решеток) в результате перераспределения концентрации наночастиц вдоль метаповерхности под действием пондеромоторных сил со стороны электромагнитного поля. Определены пороговые значения амплитуды падающего поля, приводящие к развитию неустойчивости, и характерные масштабы возникающих дифракционных решеток.

Финансирование. Работа выполнена при поддержке НЦМУ «Центр фотоники», при финансировании Министерством науки и высшего образования РФ, соглашение № 075-15-2022-316.

ЛИТЕРАТУРА

1. D. R. Smith, W. J. Padilla, D. C. Vier et al., Phys. Rev. Lett. **84**, 4184 (2000).
2. S. Zhang, W. Fan, B. K. Minhas et al., Phys. Rev. Lett. **94**, 037402 (2005).

3. H. J. Lezec, J. A. Dionne, and H. A. Atwater, *Science* **316**, 430 (2007).
4. A. N. Poddubny, I. Iorsh, P. A. Belov et al., *Nat. Photon.* **7**, 958 (2013).
5. M. A. Noginov, Y. A. Barnakov, G. Zhu et al., *Appl. Phys. Lett.* **94**, 151105 (2009).
6. N. A. Zharova, A. A. Zharov, and A. A. Zharov, Jr., *Adv. Cond. Mat. Phys.* **2018**, 4578149 (2018); H. A. Жарова, А. А. Жаров, А. А. Жаров, мл., *ЖЭТФ* **156**, 396 (2019).
7. M. Lapine, I. V. Shadrivov, D. A. Powell et al., *Nat. Mater.* **11**, 30 (2012).
8. A. A. Zharov, I. V. Shadrivov, and Y. S. Kivshar, *Phys. Rev. Lett.* **91**, 037401 (2003).
9. A. P. Slobozhanyuk, M. Lapine, D. A. Powell et al., *Adv. Mater.* **25**, 3409 (2013).
10. A. R. Davoyan, I. V. Shadrivov, A. A. Zharov et al., *Phys. Rev. Lett.* **105**, 116804 (2010).
11. M. I. Stockman, *Phys. Rev. Lett.* **93**, 137404 (2004).
12. L. Cao and M. L. Brongersma, *Nat. Photon.* **3**, 12 (2009).
13. L. Novotny, *Nature* **455**, 887 (2008).
14. Y. A. Urzhumov, G. Shvets, J. A. Fan et al., *Opt. Express* **15**, 14129 (2007).
15. M. Fruhnert, S. Muhlig, F. Lederer et al., *Phys. Rev. B* **89**, 075408 (2014).
16. A. A. Zharov, A. A. Zharov, Jr., and N. A. Zharova, *J. Opt. Soc. Am. B* **31**, 559 (2014).
17. M. Liu, K. Fan, W. Padilla et al., *Adv. Mater.* **28**, 1553 (2016).
18. A. Zharov, Z. Viskadourakis, G. Kenanakis et al., *Nanomaterials* **11**, 346 (2021).
19. Y. S. Kivshar, *Nano Lett.* **22**, 3513 (2022).
20. T. Pertsch and Y. Kivshar, *Mater. Res. Soc. Bull.* **45**, 210 (2020).
21. K. Koshelev, G. Favraud, A. Bogdanov et al., *Nanophotonics* **8**, 725 (2019).
22. S. I. Azzam and A. V. Kidishev, *Adv. Opt. Mater.* **9**, 2001469 (2021).
23. J. C. M. Garnett, *Philos. Trans. Roy. Soc. London* **203**, 385 (1904).
24. R. El-Ganainy, D. N. Christodoulides, C. Rotschild et al., *Opt. Express* **15**, 10207 (2007).
25. R. Gordon and J. T. Blakely, *Phys. Rev. A* **75**, 055801 (2007).
26. M. Matuszewski, W. Krolikowski, and Y. S. Kivshar, *Opt. Express* **16**, 1371 (2008).