

П.М. ТОМЧУК,¹ Д.В. БУТЕНКО^{1,2}

¹ Інститут фізики НАН України

(Просп. Науки, 46, Київ 03680; e-mail: ptomchuk@iop.kiev.ua)

² Національний університет "Києво-Могилянська академія"

(Вул. Г. Сковороди, 2, Київ 04070; e-mail: danil.butenko@gmail.com)

ЗАЛЕЖНІСТЬ ДЕКРЕМЕНТІВ ЗГАСАННЯ ДИПОЛЬНИХ ПЛАЗМОВИХ РЕЗОНАНСІВ ВІД ФОРМИ МЕТАЛЕВИХ НАНОЧАСТИНОК

УДК 538.9

В роботі розвинута теорія залежності декрементів згасання дипольних плазмових резонансів в металевих наночастинках від їх форми. Для частинок у вигляді еліпсоїда обертання у випадку домінуючої ролі розсіяння електронів на поверхні отримані аналітичні формули (і побудовані графіки) залежності декрементів згасання як функції відношення радіусів кривизни. Проілюстрована значна залежність декрементів від форми наночастинок. Показано, що при інкорпорації металевих наночастинок певної форми у діелектричну матрицю з високою діелектричною проникністю можливий резонанс, зумовлений збіганням частоти плазмового дипольного коливання з частотою індивідуальних електронних осциляцій (від однієї потенціальної стінки до протилежної). Такий резонанс зумовлює появу квазіосциляційної розмірної залежності декрементів згасання плазмових коливань.

Ключові слова: декременти згасання, плазмові резонанси, металеві наночастинки.

1. Вступ

Вивчення фізичних властивостей металевих наночастинок (МН) і їх ансамблів ведеться порівняно давно, але особливо інтенсивно в останні роки.

Вивчаються емісійні [1], оптично-плазмові [2, 3] та інші [4] властивості. Інтерес до цих об'єктів зумовлений тим, що їм притаманні нові фізичні закономірності, які відсутні в масивних металах. Це, перш за все, наявність в МН поверхневих плазмових резонансів (колективних коливань електронної системи кластера відносно його остову), а також модифікація при малих розмірах частинок електрон-ґраткового енергообміну, що сприяє появі гарячих електронів при введенні в МН енергії.

Що стосується плазмових резонансів (ПР), то їх положення на шкалі частот і їх кількість залежать від форми МН. В сферично-симетричній МН існує

один дипольний плазмовий резонанс, в частинці циліндричної симетрії – їх два, а в еліпсоїдальній – три. Частоти ПР попадають у видимий діапазон, тому їх наявність істотно визначає оптичні властивості МН і їх ансамблів. Зокрема, мова йде про явища поглинання і розсіяння світла МН і їх ансамблями.

Крім того, збудження ПР зумовлює появу високих локальних електричних полів. Цей ефект широко використовують в біофізиці [5].

При введенні в МН чи їх ансамблі (острівцеві плівки) енергії шляхом їх опромінення лазерним потоком або пропусканням струму, електронний газ в таких системах стає "гарячим". При цьому температура гарячих електронів вирішальним чином залежить від характеру електрон-ґраткового енергообміну [1]. Як показано в [1, 6, 7], інтенсивність електрон-ґраткового енергообміну при розмірах МН, менших за довжину вільного пробігу електрона, починає квазіосциляційно зменшуватись

зі зменшенням кластерів, і при певних розмірах об'ємний енергообмін зникає зовсім. При цьому залишається лише поверхневий енергообмін, інтенсивність якого на порядки менша за об'ємний. Завдяки такій особливості електрон-граткового енергообміну в острівцевих металевих плівках можна отримувати гарячі електрони не тільки при імпульсному введенні потужності, а й в стаціонарному режимі [1]. В масивних металах і суцільних металевих плівках отримати гарячі електрони в стаціонарних (квазістаціонарних) умовах, як відомо, не вдається, оскільки інтенсивний електрон-гратковий обмін сприяє розігріву ґратки і термічному її руйнуванню. Плазмові резонанси в МН характеризуються власними частотами (ω_α) і їх декрементами (γ_α). Що стосується залежності частот ω_α від форми і розмірів МН, то на тепер ці залежності добре вивчені (див., наприклад, [3]). Гірша ситуація з розмірними залежностями декрементів γ_α , особливо при розмірах МН, менших за довжину вільного пробігу електрона. Навіть в найпростішому випадку сферично-симетричної МН декремент згасання дипольних ПР, при врахуванні розсіяння електронів [8–10] як в об'ємі, так і на поверхні, часто записують у вигляді:

$$\gamma = \nu + A \frac{v_F}{R},$$

де ν – об'ємна частота зіткнень, v_F – швидкість Фермі, R – радіус МН. Константа A або приймається рівною $A = 3/4$, або вважається підгоночним параметром [8–10]. Насправді, сама “константа” A може залежати від розмірів і форми МН (і ми це побачимо далі), а її явний вигляд можна отримати тільки в кінетичному підході при описанні процесів розсіяння електронів в об'ємі і на поверхні МН [11, 12]. Необхідність використання кінетичного підходу робиться тим більш актуальною у випадку асиметричної форми МН, коли оптична провідність стає тензорною величиною [11–13], і при цьому згадана вище “константа” A буде мати різний вигляд для різних дипольних ПР однієї і тієї самої металевої частинки.

В цій роботі побудована на основі кінетичного підходу теорія розмірної залежності декрементів згасання ПР в металевих малих частинках еліпсоїдальної форми. Показано, що при певних умовах можлива квазіосциляційна розмірна залежність декременту ПР, а також вперше отримано явну аналітичну залежність від форми цих декре-

ментів (при домінуючій ролі поверхневого розсіяння електронів в МН).

2. Постановка задачі

Будемо розглядати металеву наночастинку еліпсоподібної форми в полі електромагнітної хвилі:

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = \mathbf{E}_0 e^{-i(\omega t - \mathbf{k}\mathbf{r})}, \quad (1)$$

де \mathbf{E}_0 – амплітуда електромагнітної хвилі, ω – її частота, \mathbf{k} – хвильовий вектор, \mathbf{r} та t – вектор координати та час відповідно.

Вибір еліпсоподібної форми частинки приваблює тим, що результати, отримані для такої форми шляхом деформації радіусів кривизни еліпсоїда, можна поширити на широкий спектр форм (від дископодібної до стрижнеподібної [11, 13]).

Будемо вважати, що довжина електромагнітної хвилі значно більша за розміри частинки, тобто:

$$kL \ll 1, \quad (2)$$

де $L = \max(R_i)$; R_i – радіус кривизни ($i = 1, 2, 3$).

Під час виконання (2) електромагнітна хвиля (1) індукує всередині металевої наночастинки еліпсоподібної форми просторово однорідне електричне поле [14]:

$$E_{in}^\beta e^{-i\omega t} = \frac{E_0^\beta e^{-i\omega t}}{1 + L_\beta [\epsilon_{\beta\beta} - 1]}, \quad (3)$$

де L_β – фактор деполаризації, $\epsilon_{\beta\beta}$ – діагональна компонента тензора діелектричної проникності.

У випадку сферичної форми частинки $\epsilon_{\beta\beta}$ стає скаляром і набуває вигляду:

$$\epsilon(\omega) = \epsilon'(\omega) + i\epsilon''(\omega) = 1 - \frac{\omega_{pl}^2}{\omega^2 + \nu^2} + i\nu \frac{\omega_{pl}^2}{\omega(\omega^2 + \nu^2)}. \quad (4)$$

В (4) ω_{pl} – об'ємна плазмова частота:

$$\omega_{pl} = \sqrt{\frac{4\pi n e^2}{m}}, \quad (5)$$

де e – заряд електрона, m – маса електрона, n – концентрація електронів.

В еліпсоподібній металевій наночастинці, розміри якої менші за довжину вільного пробігу електрона (а значить домінує розсіяння електронів на поверхні кластера), уявна частина діелектричної проникності стає тензором [11, 13]:

$$\epsilon''(\omega) \rightarrow \epsilon''_{\beta\beta}(\omega) = \frac{4\pi}{\omega} \sigma_{\beta\beta}(\omega), \quad (6)$$

де $\sigma_{\beta\beta}$ – компоненти тензора оптичної провідності.

Внутрішнє електричне поле (3) викликає в нанокластері високочастотний струм:

$$j_{\alpha}(\mathbf{r}, \omega) = 2e \left(\frac{m}{2\pi\hbar} \right)^3 \int v_{\alpha} f_1(\mathbf{r}, \mathbf{v}) d^3v = \sum_{\beta=1}^3 \sigma_{\alpha\beta}(\mathbf{r}, \omega) E_{\text{in}}^{\beta}, \quad (7)$$

де $f_1(\mathbf{r}, \mathbf{v})$ – функція розподілу електронів у полі \mathbf{E}_{in} , яку можна записати у вигляді:

$$f(\mathbf{r}, \mathbf{v}) = f_0(\varepsilon) + f_1(\mathbf{r}, \mathbf{v}), \quad (8)$$

$f_0(\varepsilon)$ – фермієвська функція розподілу електронів по енергії ε , а $f_1(\mathbf{r}, \mathbf{v})$ – лінійна по \mathbf{E}_{in} поправка до $f_0(\varepsilon)$. Для визначення функції $f_1(\mathbf{r}, \mathbf{v})$ використовується лінеаризоване по \mathbf{E}_{in} кінетичне рівняння

$$(\nu - i\omega)f_1(\mathbf{r}, \mathbf{v}) + \mathbf{v} \frac{\partial f_1(\mathbf{r}, \mathbf{v})}{\partial \mathbf{r}} + e\mathbf{E}_{\text{in}}\mathbf{v} \frac{\partial f_0}{\partial \varepsilon} = 0 \quad (9)$$

з граничними умовами на поверхні

$$f_1(\mathbf{r}, \mathbf{v})|_S = 0, \quad v_n < 0, \quad (10)$$

де v_n – нормальна до поверхні складова швидкості. Умова (10) відповідає дифузному механізму розсіяння електрона на поверхні металевго нанокластера.

У еліпсоїдальній формі нормаль до поверхні залежить від усіх координат і усіх R_i . Ця обставина ускладнює розв'язок (9). Щоб уникнути таких ускладнень, доцільно в (9) перейти до деформованої системи координат і швидкостей:

$$x'_i = \gamma_i x_i, \quad v'_i = \gamma_i v_i, \quad \gamma_i = \frac{R}{R_i}, \quad R = (R_1 R_2 R_3)^{1/3}. \quad (11)$$

У деформованій системі координат (штрихованій) наночастинка набуває форми сфери з об'ємом, рівним об'єму вихідної еліпсоїдальної частинки. При цьому гранична умова (10) сильно спрощується.

Розв'язок рівняння (9) з граничними умовами (10) в деформованій системі координат має вигляд [15]:

$$f_1(\mathbf{r}, \mathbf{v}) = -e\mathbf{E}_{\text{in}}\mathbf{v} \frac{\partial f_0}{\partial \varepsilon} \frac{1 - \exp[-(\nu - i\omega)t_0(\mathbf{r}', \mathbf{v}')] }{\nu - i\omega}, \quad (12)$$

де t_0 – характеристика рівняння (9):

$$t_0(\mathbf{r}', \mathbf{v}') = \frac{1}{v'^2} \left[\mathbf{r}'\mathbf{v}' + \sqrt{(\mathbf{R}^2 - \mathbf{r}'^2)\mathbf{v}'^2 + (\mathbf{r}'\mathbf{v}')^2} \right]. \quad (13)$$

Знайшовши за допомогою (7) і (12) високочастотний струм, який генерує в металевій наночастинці внутрішнє поле \mathbf{E}_{in} , можна отримати вираз для енергії, поглинутої частинкою в одиницю часу [11]:

$$W = \frac{1}{2} \text{Re} \int d^3r \mathbf{j}(\mathbf{r}) \mathbf{E}_{\text{in}}^*(\mathbf{r}) = \frac{V}{2} \sum_{\alpha=1}^3 \frac{\sigma_{\alpha\alpha} (\epsilon_m \omega^2 / g_{\alpha})^2 |E_0^{\alpha}|^2}{(\omega_{\alpha}^2 - \omega^2)^2 + (4\pi L_{\alpha} \sigma_{\alpha\alpha} / g_{\alpha})^2 \omega^2}. \quad (14)$$

Вираз (14) виписаний для загального випадку, коли металева частинка знаходиться в діелектричній матриці з діелектричною проникністю ϵ_m . При цьому

$$g_{\alpha} = \epsilon_m + L_{\alpha}(1 - \epsilon_m). \quad (15)$$

А власні плазмові частоти ω_{α} мають вигляд [11, 12]:

$$\omega_{\alpha} = \left(\frac{L_{\alpha}}{g_{\alpha}} \right)^{1/2} \omega_{pl}. \quad (16)$$

В вакуумі $\epsilon_m = 1$, $g_{\alpha} = 1$. Як видно із (14), декремент плазмового дипольного коливання дорівнює:

$$\gamma_{\alpha} = 4\pi L_{\alpha} \sigma_{\alpha\alpha} / g_{\alpha}. \quad (17)$$

Наша задача полягає в тому, щоб дослідити, як змінюється декремент згасання дипольних плазмових коливань γ_{α} при переході від об'ємного розсіяння електронів до поверхневого (як наслідок зміни розмірів кластера).

3. Квазіосциляційна розмірна залежність декременту згасання плазмових дипольних коливань

У вирази (14) і (17) входить дійсна частина усереднених за об'ємом компонент тензора $\sigma_{\alpha\beta}(\mathbf{r}, \omega)$. Згідно з (12) маємо

$$\sigma_{\alpha\alpha}(\mathbf{r}, \omega) = \frac{2e}{V} \left(\frac{m}{2\pi\hbar} \right)^3 \text{Re} \int d^3r' \int d^3v v_{\alpha} \times \left[-e v_{\alpha} \frac{\partial f_0}{\partial \varepsilon} \frac{1 - e^{-(\nu - i\omega)t_0(\mathbf{r}', \mathbf{v}')}}{\nu - i\omega} \right]. \quad (18)$$

До цих пір усі викладки були справедливі для еліпсоїдальної форми наночастинки з трьома різними радіусами кривизни. Далі, з метою отримати кінцеві результати в аналітичному вигляді, ми обмежимося еліпсоїдом обертання (тобто приймемо $R_1 = R_2 = R_\perp, R_3 = R_\parallel$). Якщо прийняти до уваги, що інтеграл, який входить в (18) дорівнює

$$\int \frac{d^3r'}{V} \left[1 - e^{-(\nu-i\omega)t_0(\mathbf{r}', \mathbf{v}')} \right] = \frac{3}{4} \left[\frac{4}{3} - \frac{2}{q} + \frac{4}{q^3} - \frac{4}{q^2} \left(1 + \frac{1}{q} \right) e^{-q} \right] = \frac{3}{4} \Psi(q), \quad (19)$$

де $q = 2R(\nu - i\omega)/v'$, то виразу (18) для діагональних компонент тензора оптичної провідності можна надати вигляд:

$$\sigma_{\alpha\beta}(\omega) = \frac{3}{2} \left(\frac{m}{2\pi\hbar} \right)^3 \text{Re} \frac{e^2}{\nu - i\omega} \int d^3v v_\alpha v_\beta \delta(\varepsilon - \varepsilon_F) \Psi(q). \quad (20)$$

В (20) ми врахували, що $\frac{\partial f_0}{\partial \varepsilon} = -\delta(\varepsilon - \varepsilon_F)$, де ε_F – енергія Фермі.

Приймемо за напрямок OZ вісь еліпсоїда обертання. Тоді “деформована” швидкість v' , яка входить у вираз для q , буде мати згідно з (11) вигляд

$$v' = vR \left[\frac{\sin^2 \theta}{R_\perp^2} + \frac{\cos^2 \theta}{R_\parallel^2} \right]^{1/2}. \quad (21)$$

В результаті із (20) отримуємо

$$\begin{aligned} \sigma_\perp(\omega) &= \sigma_{xx}(\omega) = \sigma_{yy}(\omega) = \\ &= \frac{9ne^2}{8m} \text{Re} \frac{1}{\nu - i\omega} \int_0^{\pi/2} d\theta \sin^3 \theta \Psi(q)|_{\varepsilon=\varepsilon_F}, \\ \sigma_\parallel(\omega) &= \sigma_{zz}(\omega) = \\ &= \frac{9ne^2}{4m} \text{Re} \frac{1}{\nu - i\omega} \int_0^{\pi/2} d\theta \sin \theta \cos^2 \theta \Psi(q)|_{\varepsilon=\varepsilon_F}. \end{aligned} \quad (22)$$

3.1. Випадок сферичної форми металеві наночастинки

У випадку сферичної форми наночастинки маємо $R_\perp = R_\parallel = R, v' = v$. При цьому із (22) отримуємо

$$\sigma_\perp(\omega) = \sigma_\parallel(\omega) = \frac{3ne^2}{4m} \text{Re} \frac{\Psi(q)|_{\varepsilon=\varepsilon_F}}{\nu - i\omega}. \quad (23)$$

Вираз (23) дає значення оптичної провідності сферичної наночастинки при довільному співвідношенні між об'ємним і поверхневим розсіянням. Цей вираз (враховуючи вигляд $\Psi(q)$) все ще досить громіздкий. Значно простіші вирази отримуємо із (23) в граничних випадках, коли домінує один із механізмів розсіяння (об'ємний чи поверхневий).

Оскільки $q_1 = 2R\nu/v'$ визначається відношенням об'ємної частоти розсіяння ν до поверхневої частоти розсіяння $v'/2R$, то формально чисто об'ємний механізм розсіяння ми отримуємо із (23) при $q_1 \rightarrow \infty$, а чисто поверхневий механізм – при $q_1 \rightarrow 0$. Отже, при об'ємному механізмі розсіяння маємо із (19) $\Psi(q) \approx 4/3$. Тому, згідно з (23), будемо мати:

$$\sigma = \frac{ne^2}{m} \frac{\nu}{\nu^2 + \omega^2} = \frac{\omega_{pl}^2}{4\pi} \frac{\nu}{\nu^2 + \omega^2}. \quad (24)$$

Декремент згасання плазмового дипольного коливання сферичної металеві наночастинки у вакуумі згідно з (15) і (17) має вигляд

$$\gamma(\omega) = \frac{4\pi}{3} \sigma(\omega) = \frac{\omega_{pl}^2}{3} \frac{\nu}{\nu^2 + \omega^2}. \quad (25)$$

Оскільки $\gamma(\omega)$ описує згасання дипольного коливання, яке відбувається на частоті $\omega_S = \omega_{pl}/\sqrt{3}$, то цікавить значення $\gamma(\omega)|_{\omega=\omega_S}$.

Частота ω_S знаходиться у видимому діапазоні, а тому $\omega_S \gg \nu$. Враховуючи це, із (25) отримуємо $\gamma(\omega_S) \approx \nu$.

Тобто у випадку об'ємного розсіяння час релаксації дипольного плазмового коливання збігається з часом релаксації імпульсу в об'ємному металі.

Більш цікавий випадок домінування поверхневого розсіяння $q_1 \rightarrow 0$. В цьому випадку, як бачимо із (19), отримуємо

$$\begin{aligned} \Psi(q)|_{q_1 \rightarrow 0} &\rightarrow \Psi(-iq_2) = \frac{4}{3} + \frac{4}{q_2^2} \left(\cos q_2 - \frac{1}{q_2} \sin q_2 \right) + \\ &+ i \left[-\frac{2}{q_2} + \frac{4}{q_2^2} \sin q_2 - \frac{4}{q_2^3} (1 - \cos q_2) \right], \end{aligned} \quad (27)$$

де $q_2 = 2R\omega/v'$. Використовуючи (27), із (23) знаходимо:

$$\begin{aligned} \sigma &= \frac{3}{8\pi} \nu_s \left(\frac{\omega_{pl}}{\omega} \right)^2 \left[1 - 2 \frac{\nu_s}{\omega} \sin \frac{\omega}{\nu_s} + \right. \\ &\left. + 2 \left(\frac{\nu_s}{\omega} \right)^2 \left(1 - \cos \frac{\omega}{\nu_s} \right) \right], \end{aligned} \quad (28)$$

де $\nu_s = v_F/2R$ – частота осциляцій електрона від однієї потенційної стінки до протилежної (v_F – швидкість Фермі).

Тепер (при поверхневому розсіянні) для сферичної наночастинки у вакуумі отримуємо

$$\gamma(\omega) = \frac{3v_F}{4R} \left[1 - 2\frac{\nu_s}{\omega} \sin \frac{\omega}{\nu_s} + 2\left(\frac{\nu_s}{\omega}\right)^2 \left(1 - \cos \frac{\omega}{\nu_s}\right) \right]. \quad (29)$$

Ми бачимо квазіосциляційну розмірну залежність, яка виникає, коли частота індивідуальних коливань електрона від стінки до стінки ($\nu_s = v_F/2R$) наближається до частоти колективних коливань електронної системи ($\omega_S = \omega_{pl}/\sqrt{3}$) відносно іонного остова.

В граничних випадках ($\nu_s \gg \omega_S$ або $\nu_s \ll \omega_S$) фігурна дужка в (29) прямує до одиниці.

У випадку сферичної металевої наночастинки, яка знаходиться у вакуумі, спостерігати квазіосциляційні залежності (29) мабуть не реально, оскільки, як правило, $\nu_s \ll \omega_S$.

Проте, як бачимо із (16), спостерігати такі осциляції стає можливим за рахунок підбору матриці з відповідним підбором діелектричної проникності ϵ_m і відповідної форми частинки (а, значить L_α).

Варто наголосити на тому, що згідно з (25) високочастотна провідність $\sigma(\omega)$ визначає при частотах $\omega = \omega_S$ ширину плазмового резонансу. Проте, на частотах, далеких від резонансу, $\sigma(\omega)$ визначає джоулеві енергетичні втрати індивідуальних електронів, не пов'язаних з колективним рухом. При цьому, коли зовнішня частота електричного поля ω збігається з частотою індивідуальних осциляцій $\nu_s = v_F/2R$, то поглинута енергія у випадку домінування поверхневого розсіяння також починає квазіосциляційно залежати від ν_s/ω . Про це було вперше сказано в роботах [11, 16] відносно електричного поглинання і в роботах [15, 17] відносно магнітного поглинання.

3.2. Випадок металевої наночастинки у формі еліпсоїда обертання

У випадку форми наночастинки у формі еліпсоїда обертання діагональні компоненти тензора оптичної провідності задані формулами (22). Коли домінуючим є поверхневе розсіяння $q_1 \rightarrow 0$, то $q \rightarrow -iq_2$.

При цьому згідно з (21) і визначенню змінної q будемо мати:

$$q_2 = \frac{2R\omega}{v'} = \frac{2R_\perp\omega}{v} (1 - e_p^2 \cos^2 \theta)^{-1/2}. \quad (30)$$

де $e_p^2 = \left| 1 - R_\perp^2/R_\parallel^2 \right|$ (e_p – ексцентриситет сфероїда), θ – кут між \mathbf{v} і віссю симетрії сфероїда.

Використовуючи (30), можна в (22) перейти від інтегрування по θ до інтегрування по $q_2 \equiv x$. При цьому, прийнявши до уваги (27), із (22) при $q_1 \rightarrow 0$ отримуємо

$$\sigma_\parallel(\omega) = \frac{9ne^2}{2m\omega} \left(\frac{\omega}{\nu_{s,\perp}}\right)^2 \frac{1}{e_p^3} \int_{\omega/\nu_{s,\perp}}^{\omega/\nu_{s,\parallel}} \frac{dx}{x^4} \left[1 - \left(\frac{\omega}{\nu_{s,\perp}x}\right)^2 \right]^{1/2} \times \left[1 - \frac{2}{x} \sin x + \frac{2}{x^2} (1 - \cos x) \right], \quad (31)$$

$$\sigma_\perp(\omega) = \frac{9ne^2}{4m\omega} \left(\frac{\omega}{\nu_{s,\perp}}\right)^2 \frac{e_p^2 - 1}{e_p^3} \int_{\omega/\nu_{s,\perp}}^{\omega/\nu_{s,\parallel}} \frac{dx}{x^4} \frac{1 - \left(\frac{\omega}{\nu_{s,\parallel}x}\right)^2}{\left[1 - \left(\frac{\omega}{\nu_{s,\perp}x}\right)^2 \right]^{1/2}} \times \left[1 - \frac{2}{x} \sin x + \frac{2}{x^2} (1 - \cos x) \right]. \quad (32)$$

В формулах (31), (32) введено позначення:

$$\nu_{s,\parallel} = \frac{v_F}{2R_\parallel}, \quad \nu_{s,\perp} = \frac{v_F}{2R_\perp}. \quad (33)$$

Декременти згасання дипольних плазмових коливань, які відбуваються вздовж і поперек до осі обертання еліпсоїда, згідно з (17) мають вигляд

$$\gamma_\parallel = 4\pi L_\parallel \sigma_\parallel(\omega)|_{\omega=\omega_\parallel}, \quad (34)$$

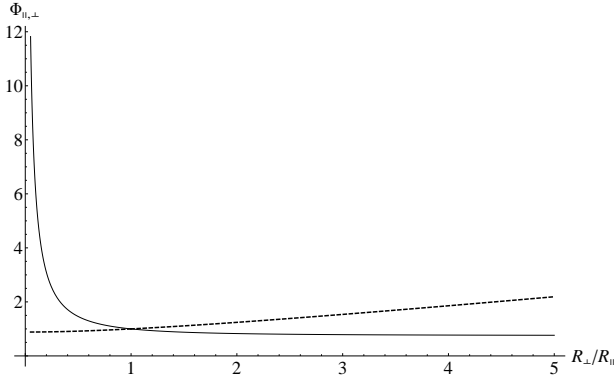
$$\gamma_\perp = 4\pi L_\perp \sigma_\perp(\omega)|_{\omega=\omega_\perp}. \quad (35)$$

Як видно із (31) і (32), на частотах, які задовольняють нерівності

$$\omega > \nu_{s,\parallel}, \nu_{s,\perp}, \quad (36)$$

(в тому числі на власних частотах, що задовольняють умову (36)) можна опустити осциляційні доданки в фігурних дужках і залишити тільки одиницю. В такому разі інтеграли (31) і (32) беруться точно, і ми отримуємо

$$\sigma_\parallel(\omega) = \frac{9ne^2\nu_{s,\parallel}}{16m\omega^2} \frac{1}{e_p^3} \left[-e_p(1 - 2e_p^2) + (1 - e_p^2)^{-1/2} \arcsin e_p \right]. \quad (37)$$



Залежність згасання плазмових коливань від форми металевої наночастинки. Суцільна крива – $\phi_{\parallel}(e_p)$, пунктирна крива – $\phi_{\perp}(e_p)$

І аналогічно:

$$\sigma_{\perp}(\omega) = \frac{9ne^2\nu_{s,\perp}}{32m\omega^2} \frac{1}{e_p^3} \left[e_p(1+2e_p^2)(1-e_p^2)^{1/2} - (1-4e_p^2) \arcsin e_p \right]. \quad (38)$$

При отриманні виразів (37) і (38) ми використали тотожність:

$$\arcsin a \pm \arcsin b = \arcsin(a\sqrt{1-b^2} \pm b\sqrt{1-a^2}). \quad (39)$$

Використовуючи (34), (35) і (37), (38), можемо для декрементів згасання дипольних плазмових коливань в металевих наночастинках сфероїдальної форми отримати вирази:

$$\gamma_{\parallel}(\omega_{\parallel}) = \frac{3v_F}{4R_{\parallel}} \phi_{\parallel}(e_p), \quad (40)$$

де

$$\phi_{\parallel}(e_p) = \frac{3}{8e_p^3} \left[-e_p(1-2e_p^2) + (1-e_p^2)^{-1/2} \arcsin e_p \right]. \quad (41)$$

і, відповідно, для $\gamma_{\perp}(\omega_{\perp})$ отримуємо

$$\gamma_{\perp}(\omega_{\perp}) = \frac{3v_F}{4R_{\perp}} \phi_{\perp}(e_p), \quad (42)$$

де

$$\phi_{\perp}(e_p) = \frac{3}{16e_p^3} \left[e_p(1+2e_p^2)(1-e_p^2)^{1/2} - (1-4e_p^2) \arcsin e_p \right]. \quad (43)$$

У випадку сферичної форми $e_p \rightarrow 0$ і отримуємо $\phi_{\parallel}(0) = \phi_{\perp}(0) = 1$.

Функції $\phi_{\parallel, \perp}(e_p)$ характеризують залежність згасання плазмових коливань від форми металевої наночастинки. Ці залежності подані на рисунку.

Формули (41) і (43) справедливі тільки для витягнутого еліпсоїда обертання (тобто, при $0 \leq e_p \leq 1$). Для випадку сплюсненого еліпсоїда обертання ($1 \leq e_p \leq \infty$) отримуємо замість (41) і (43) відповідно такі вирази:

$$\phi_{\parallel}(e_p) = \frac{3}{8e_p^3} \left[e_p(1+2e_p^2) - (1+e_p^2)^{-1/2} \ln(e_p + \sqrt{1+e_p^2}) \right], \quad (44)$$

$$\phi_{\perp}(e_p) = \frac{3}{16e_p^3} \left[e_p(2e_p^2-1)(1+e_p^2)^{1/2} + (1+4e_p^2) \ln(e_p + \sqrt{1+e_p^2}) \right]. \quad (45)$$

Випадок сферичної форми МН відповідає на рисунку значенню $R_{\perp}/R_{\parallel} = 1$ (або $e_p = 0$).

З рисунка видно, що вплив форми МН на декременти згасання ПР не зводиться до малих поправок до відомих результатів для випадку сферичних МН. Як бачимо, залежно від форми, функції $\phi_{\parallel}(e_p)$ і $\phi_{\perp}(e_p)$ можуть змінюватись в декілька разів. Отже, форма МН може істотно впливати не тільки на частоту ПР, а й на декременти згасання. Наостанок треба зазначити, що ми дослідили вплив форми МН на декременти згасання ПР в класичному випадку. Подібний ефект виникає і в квантовому випадку через появу квантових рівнів, які визначаються граничними умовами на поверхні МН [5].

4. Висновки

В статті побудовано теорію залежності декрементів згасання ПР від форми МН для розмірів частинок, в яких домінуючим стає розсіяння електронів на поверхні.

Показано, що у випадку інкорпорації МН в діелектричну матрицю з високим значенням діелектричної проникності можлива поява квазіперіодичної розмірної залежності декременту згасання ПР, зумовлена збіганням частоти дипольного ПР з частотою індивідуальних осциляцій електрона (від однієї потенційної стінки до протилежної).

Для частинок у формі еліпсоїда обертання отримані аналітичні вирази і побудовані графіки для

декрементів згасання ПР як функції відношення радіусів кривизни R_{\perp}/R_{\parallel} . Показано, що вплив форми МН на декременти згасання ПР є істотним і не зводиться до малих уточнень відомих результатів для сферичних форм МН. Тому, при інтерпретації експериментальних результатів, потрібно враховувати залежність від форми не тільки частот ПР, а також і їх декрементів.

1. R.D. Fedorovich, A.G. Naumovets, and P.M. Tomchuk, Phys. Rep. **328**, 73 (2000).
2. G.V. Hartland, Chem. Rev **111**, 3858 (2011).
3. В.В. Климов, *Наноплазмоника* (Физматлит, Москва, 2010).
4. С.Ф. Венгер, А.В. Гончаренко, М.П. Дмитрук, *Оптика малих частинок і дисперсних середовищ* (Наукова думка, Київ, 1999).
5. Н.Г. Хлебцов, Квантовая электроника **38**, 6 (2008).
6. E.D. Belotskii and P.M. Tomchuk, Surf. Sci. **239**, 143 (1990).
7. E.D. Belotskii, P.M. Tomchuk, Jnt. Electronics **69**, 169 (1990).
8. U. Kreibig, *Optical Properties of Metal Clusters*, by edit. U. Kreibig, M. Vollmer (New-York, Springer Verlag, Berlin, Heidelberg, 1995).
9. A. Pinchuk and U. Kreibig, New Journal of Physics **5**, 151.1 (2003).
10. A. Pinchuk, G. von Plessen, and U. Kreibig, Journal of Physics D **37**, 3133 (2004).
11. P.M. Tomchuk and N.I. Grigoruk, Phys. Rev. **73**, 155423 (2006).
12. N.I. Grigoruk and P.M. Tomchuk, Phys. Rev. **84**, 085448 (2011).
13. П.М. Томчук, Б.М. Томчук, ЖЭТФ **112**, 661 (1997).
14. Л.Д. Ландау, Е.М. Лифшиц, *Электродинамика сплошных сред* (Наука, Москва, 1982).
15. А.Г. Лесскис, В.Е. Пастернак, А.А. Юшканов, ЖЭТФ **83**, 310 (1982).
16. М.І. Григорчук, П.М. Томчук, УФЖ **51**, 9 (2006).
17. А.Г. Лесскис, А.А. Юшканов, Ю.И. Яламов, "Поверхность", физика, химия, механика **11**, 11 (1987).

Одержано 10.09.14

П.М. Томчук, Д.В. Бутенко

ЗАВИСИМОСТЬ ДЕКРЕМЕНТОВ ЗАТУХАНИЯ ДИПОЛЬНЫХ ПЛАЗМЕННЫХ РЕЗОНАНСОВ ОТ ФОРМЫ МЕТАЛЛИЧЕСКИХ НАНОЧАСТИЦ

Резюме

В работе развита теория зависимости декрементов затухания дипольных плазменных резонансов в металлических наночастицах от их формы. Для частиц в виде эллипсоида вращения в случае доминирующей роли рассеяния электронов на поверхности получены аналитические формулы (и построены графики) зависимости декрементов затухания как функции отношения радиусов кривизны. Проиллюстрирована значительная зависимость декрементов от формы наночастиц. Показано, что при инкорпорации металлических наночастиц определенной формы в диэлектрическую матрицу с высокой диэлектрической проницаемостью возможен резонанс, обусловленный совпадением частоты плазменного дипольного колебания с частотой индивидуальных электронных осцилляций (от одной потенциальной стенки до противоположной). Такой резонанс приводит к появлению квазиосциллирующей размерной зависимости декремента затухания плазменных колебаний.

Р.М. Томчук, Д.В. Бутенко

DEPENDENCES OF DIPOLE PLASMON RESONANCE DAMPING CONSTANTS ON THE SHAPE OF METALLIC NANOPARTICLES

Резюме

A theory describing the dependence of the damping constants of dipole plasmon resonances on the shape of metallic nanoparticles has been developed. Analytical expressions for the damping constants as functions of the ratio between the curvature radii are derived in the case of spheroidal particles and provided the dominating role of electron scattering at the surface. The corresponding plots are drawn. A considerable dependence of the damping constants on the nanoparticle shape is illustrated. It is shown that the incorporation of metallic nanoparticles of a certain shape into a dielectric matrix with a high dielectric permeability can lead to a resonance caused by the coincidence of the plasmon resonance frequency with the frequency of individual electron oscillations (between the potential walls). This resonance is responsible for the appearance of a quasi-oscillating dependence of the plasmon resonance damping constants on the nanoparticle size.