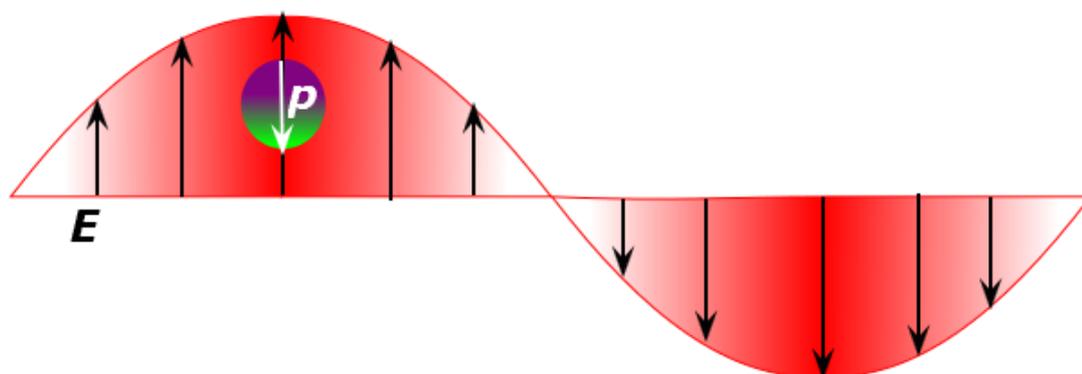


Д.П. Щербинин, Т.А. Варганян

**ПРАКТИКУМ ПО МОДЕЛИРОВАНИЮ
ОПТИЧЕСКИХ СВОЙСТВ МЕТАЛЛИЧЕСКИХ
НАНОСТРУКТУР**



Санкт-Петербург
2021

МИНИСТЕРСТВО НАУКИ И ВЫСШЕГО ОБРАЗОВАНИЯ РОССИЙСКОЙ
ФЕДЕРАЦИИ

УНИВЕРСИТЕТ ИТМО

Д.П. Щербинин, Т.А. Варганян
ПРАКТИКУМ ПО МОДЕЛИРОВАНИЮ
ОПТИЧЕСКИХ СВОЙСТВ МЕТАЛЛИЧЕСКИХ
НАНОСТРУКТУР

ПРАКТИКУМ

РЕКОМЕНДОВАНО К ИСПОЛЬЗОВАНИЮ В УНИВЕРСИТЕТЕ ИТМО
по направлению подготовки 12.04.03 Фотоника и оптоинформатика
в качестве практикума для реализации основных профессиональных
образовательных программ высшего образования магистратуры

 УНИВЕРСИТЕТ ИТМО

Санкт-Петербург
2021

Щербинин Д.П., Вартамян Т.А., Практикум по моделированию оптических свойств металлических наноструктур – СПб: Университет ИТМО, 2021. – 99 с.

Рецензент(ы):

Мирошниченко Георгий Петрович, доктор физико-математических наук, профессор, профессор (квалификационная категория "ординарный профессор") факультета лазерной фотоники и оптоэлектроники, Университета ИТМО.

Содержание практикума направлено на получение практических навыков и компетенций в области моделирования оптических свойств металлических наноструктур. Рассмотрены условия возбуждения коллективных колебаний носителей заряда в металлических наноструктурах – сферических и эллиптических наночастицах, тонких пленках. Особое внимание уделено подходам, позволяющим выйти за рамки модели Друде при описании оптических свойств реальных материалов. Практикум включает теоретический минимум, задания для расчетных работ, примеры проведенных расчетов. Практикум предназначен для подготовки магистров по направлению подготовки 12.04.03 "Фотоника и оптоинформатика" в рамках профиля магистерской программы «Физика и технология наноструктур».



Университет ИТМО – ведущий вуз России в области информационных и фотонных технологий, один из немногих российских вузов, получивших в 2009 году статус национального исследовательского университета. С 2013 года Университет ИТМО – участник программы повышения конкурентоспособности российских университетов среди ведущих мировых научно-образовательных центров, известной как проект «5 в 100». Цель Университета ИТМО – становление исследовательского университета мирового уровня, предпринимательского по типу, ориентированного на интернационализацию всех направлений деятельности.

© Университет ИТМО, 2021
© Щербинин Д.П., Вартамян Т.А., 2021

СОДЕРЖАНИЕ

	Список обозначения и сокращений	5
	Введение	8
1	Теоретический минимум	9
1.1	Диэлектрическая проницаемость Друде-материалов.	9
1.2	Диэлектрическая проницаемость Друде-материалов. Учет размера частиц	14
1.3	Переменный электрический ток в металлах. Определение времени затухания направленного движения носителей заряда	16
1.4	Усиление поля внутри и вокруг сферических наночастиц	21
1.5	Возбуждение локализованного плазмона в сферических наночастицах. Сечение поглощения, рассеяния и экстинкции. Квазистатическое приближение	26
1.6	Сечения поглощения, рассеяния и экстинкции сферических частиц. Теория Ми	29
1.7	Возбуждение локализованного плазмона в эллипсоидальных наночастицах	33
1.8	Возбуждение локализованного плазмона в сфероидальных наночастицах. Эксцентриситет сфероидальных наночастиц	36
1.9	Собственные колебания плазмонного типа в системе из двух частиц	42
1.10	Спектры сечения экстинкции взаимодействующих наночастиц	48
1.11	Уширение полосы плазмонного резонанса. Улучшенная квазистатическая модель	52
1.12	Уширение полосы плазмонного резонанса. Рассеяние на	55

	поверхности	
1.13	Неоднородное уширение	58
1.14	Определение времени жизни локализованного поверхностного плазмона в металлических наночастицах. Метод выжигания постоянных спектральных провалов в неоднородно уширенной полосе плазмонного поглощения	59
1.15	Возбуждение поверхностного плазмона. Конфигурация Кречмана	64
1.16	Отражение трехслойной системы	67
1.17	Возбуждение поверхностного плазмона на дифракционной решетке	70
2	Задания для выполнения	71
3	Приложения к практикуму	75
	Список источников	99

СПИСОК ОБОЗНАЧЕНИЯ И СОКРАЩЕНИЙ

α – поляризуемость

γ - скорость релаксации

γ_0 – скорость релаксации, определяемая объемными свойствами вещества

γ_j - параметр, определяющий ширину контура лоренцева осциллятора

ε – диэлектрическая проницаемость

ε' - действительная часть диэлектрической проницаемости

ε'' - мнимая часть диэлектрической проницаемости

ε_{air} – диэлектрическая проницаемость воздуха

ε_D – диэлектрическая проницаемость диэлектрической среды

ε_{inf} - высокочастотная диэлектрическая проницаемость

ε_{pr} - диэлектрическая проницаемость материала призмы

ε_m - диэлектрическая проницаемость металлического слоя

θ – угол падения

k – безразмерный коэффициент поглощения

λ – длина волны

λ_{pl} – длина волны, соответствующая плазменной частоте

λ_γ – параметр, обратно пропорциональный скорости релаксации

σ_{abs} – сечение поглощения

σ_{sca} – сечение рассеяния

σ_{ext} – сечение экстинкции

τ - время затухания направленного движения носителей заряда

ω - частота падающего излучения

ω_j - частота лоренцева осциллятора

ω_{pl} – плазменная частота

Ω – частота, на которой сечение поглощения металлической наночастицей достигает максимума

Ω_A – частота, описывающая вклад испарения в разностный спектр

Ω_B – частота, описывающая вклад изменения формы наночастиц в разностный спектр

Ω_L – частота лазерного излучения

A – безразмерный коэффициент

B – безразмерный коэффициент

D – оптическая плотность

E – вектор напряженности электрического поля

\vec{E}_0 – вектор напряженности внешнего электрического поля

\vec{E}_d – вектор напряженности поля диполя

\vec{E}_{in} – вектор напряженности электрического поля внутри наночастицы

\vec{E}_{out} – вектор напряженности электрического поля снаружи наночастицы

\vec{E}_{dep} – вектор напряженности поля, описывающего эффект деполяризации внутри наночастицы

F – энергия лазерного импульса

F_0 – величина, определяемая теплопроводностью подложки

L_i – факторы деполяризации

N – целое число

\vec{P} – вектор поляризации

R – коэффициент отражения по интенсивности

V – объем наночастицы

a_d – период дифракционной решетки

a - радиус наночастицы

a_{el} - полуось эллипсоида

b_{el} – полуось эллипсоида

c_{el} – полуось эллипсоида

c - скорость света

d – толщина металлической пленки

e - эксцентриситет

f_j - сила лоренцева осцилятора

i - мнимая единица

k – волновой вектор падающего излучения

k_x – проекция волнового вектора на ось OX

k_y – проекция волнового вектора на ось OY

k_{SPP} – волновой вектор поверхностного плазмон-поляритона

m - эффективная масса носителей

n – показатель преломления

n_e - концентрация носителей заряда

p – дипольный момент

q_e - элементарный заряд

\vec{r} – радиус-вектор

r – коэффициент отражения по амплитуде

t – коэффициент пропускания по амплитуде

v_F - скорость Ферми

ВВЕДЕНИЕ

Практикум по моделированию оптических свойств металлических наноструктур предназначен для реализации магистерской программы «Физика и технология наноструктур» по направлению подготовки 12.04.03 Фотоника и оптоинформатика для преподавания курса «Наночастицы в конденсированных средах».

Содержание практикума направлено на получение навыков и компетенций в области моделирования оптических свойств металлических наноструктур. Рассмотрены условия возбуждения коллективных колебаний носителей заряда в металлических наноструктурах – сферических, сфероидальных и эллипсоидальных наночастицах, а также в тонких пленках. Особое внимание уделено подходам, позволяющим выйти за рамки модели Друде при описании оптических свойств реальных материалов. Практикум включает теоретический минимум, задания для расчетных работ, примеры проведенных расчетов.

Практикум включает в себя семь расчетных работ, направленных на моделирование оптических свойств одиночных металлических наночастиц, тонких металлических пленок и систем, состоящих из нескольких частиц. В расчетных работах студентам предлагается исследовать дисперсию диэлектрической проницаемости реальных металлов и Друде-материалов; рассчитать спектры сечения экстинкции в сферических, сфероидальных и эллипсоидальных наночастицах; исследовать влияние размера и формы наночастиц на их спектральные характеристики; исследовать резонансные моды в системе состоящей из нескольких наночастиц; рассчитать условия возбуждения резонансных мод в тонкопленочных структурах при использовании конфигурации Кречмана, а также дифракционных решеток.

1. ТЕОРЕТИЧЕСКИЙ МИНИМУМ

1.1 ДИЭЛЕКТРИЧЕСКАЯ ПРОНИЦАЕМОСТЬ ДРУДЕ-МАТЕРИАЛОВ.

В рамках данного курса будут рассматриваться оптические свойства материалов, в которых возможно возбуждение коллективных колебаний электронов. К таким материалам относятся металлы и некоторые полупроводники. Для расчета оптических свойств любых материалов необходимо знать их диэлектрические свойства. В случае Друде-материалов дисперсия диэлектрической проницаемости в достаточно широкой спектральной области хорошо описывается следующим комплексным выражением:

$$\varepsilon = \varepsilon_{inf} - \frac{\omega_{pl}^2}{\omega(\omega + i\gamma)}, \quad (1)$$

где ω_{pl} - плазменная частота, γ - скорость релаксации, ω - частота падающего излучения, i - мнимая единица, ε_{inf} - высокочастотная диэлектрическая проницаемость. В модели Друде, учитывающей только свободные электроны, $\varepsilon_{inf} = 1$, однако в реальных материалах вклад связанных электронов приводят к отличию ε_{inf} от единицы. С помощью соотношения (1) можно описать дисперсию диэлектрической проницаемости благородных металлов в видимой области спектра вдали от их полос поглощения. Плазменная частота и скорость релаксации определяются свойствами материала и могут быть выражены как

$$\omega_{pl}^2 = \frac{4\pi q_e^2 n_e}{m}, \quad (2)$$

$$\gamma = \frac{1}{\tau}, \quad (3)$$

где q_e - элементарный заряд, n_e - концентрация носителей заряда, m - эффективная масса носителей, τ - время затухания направленного движения носителей заряда.

Для удобства расчетов перепишем выражение (1), выделив действительную и мнимую части комплексного числа:

$$\varepsilon = \left[\varepsilon_{inf} - \frac{\omega_{pl}^2}{\omega^2 + \gamma^2} \right] + i \left[\frac{\omega_{pl}^2 \gamma}{\omega(\omega^2 + \gamma^2)} \right]. \quad (4)$$

В выражении (4) дается зависимость диэлектрической проницаемости от частоты падающего излучения. Для удобства сравнения экспериментальных данных и теоретических расчетов удобнее пользоваться зависимостью диэлектрической проницаемости от длины волны (λ), которую можно записать как

$$\varepsilon = \left[\varepsilon_{inf} - \frac{\lambda^2 \lambda_\gamma^2}{\lambda_{pl}^2 (\lambda^2 + \lambda_\gamma^2)} \right] + i \left[\frac{\lambda^3 \lambda_\gamma}{\lambda_{pl}^2 (\lambda^2 + \lambda_\gamma^2)} \right], \quad (5)$$

где

$$\lambda_{pl} = \frac{2\pi c}{\omega_{pl}}, \quad (6)$$

$$\lambda_\gamma = \frac{2\pi c}{\gamma}. \quad (7)$$

c - скорость света

Выражения 1, 4 и 5 позволяют качественно описать свойства некоторых металлов в видимой области спектра. Введение единственного параметра ε_{inf} оказывается недостаточным для точного количественного описания вкладов в диэлектрическую проницаемость межзонных электронных переходов. Для более полного описания диэлектрических свойств можно использовать модель Друде-Лоренца, в которой к дисперсии, описываемой соотношением (1), прибавляется набор лоренцевых контуров. Лоренцев контур позволяет описать вклад связанных электронов в дисперсию диэлектрической проницаемости, таким образом, делая возможным учет межзонных электронных переходов в металлах. С учетом этих переходов (1) приобретает вид

$$\varepsilon = 1 - \frac{\omega_{pl}^2}{\omega(\omega + i\gamma)} + \sum_j \frac{f_j \omega_j^2}{\omega_j^2 - \omega^2 + i\omega\gamma_j}, \quad (8)$$

где f_j - сила лоренцева осцилятора, ω_j - частота лоренцева осцилятора, γ_j - параметр, определяющий ширину контура.

Формула (1) служит хорошим приближением при таких частотах, при которых последний член в (8) можно считать постоянной величиной, не зависящей от частоты.

Несмотря на то, что соотношение (8) позволяет достаточно точно описать свойства металлов, для расчета свойств реальных систем чаще используют диэлектрические функции, полученные экспериментальным путем. В приложении 1 к данному пособию можно найти значения показателя преломления (n) и коэффициента поглощения (κ) для некоторых металлов. Более подробные данные можно найти, используя ресурс [1-5]. Для расчета величин действительной (ϵ') и мнимой (ϵ'') частей диэлектрической проницаемости из величин n и κ можно воспользоваться следующими соотношениями:

$$\epsilon' = n^2 - \kappa^2, \quad (9)$$

$$\epsilon'' = 2n\kappa. \quad (10)$$

Проиллюстрируем вид дисперсий диэлектрической проницаемости. На рисунке 26 представлены дисперсии действительной и мнимой частей комплексной диэлектрической проницаемости Друде-материала, рассчитанной с помощью выражения 5. Для расчета использовались следующие параметры: $\epsilon_{inf} = 1$, $\omega_{pl} = 8 \cdot 10^{15} \text{ с}^{-1}$, $\gamma = 1 \cdot 10^{15} \text{ с}^{-1}$. Программа расчета спектров с помощью приведена в приложении 2.

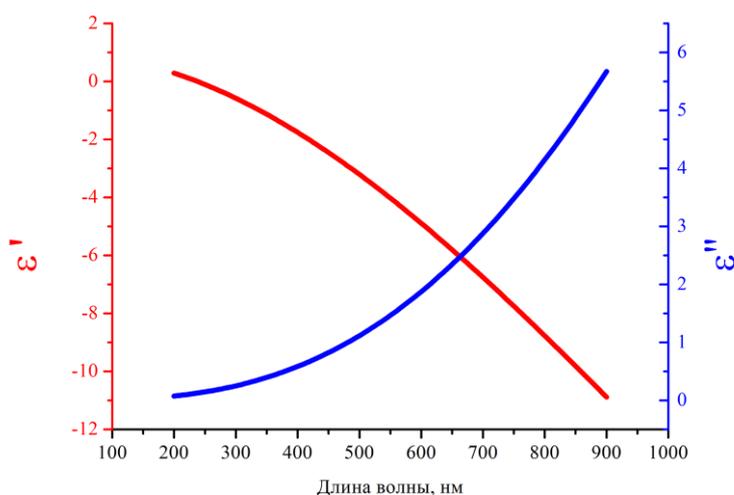
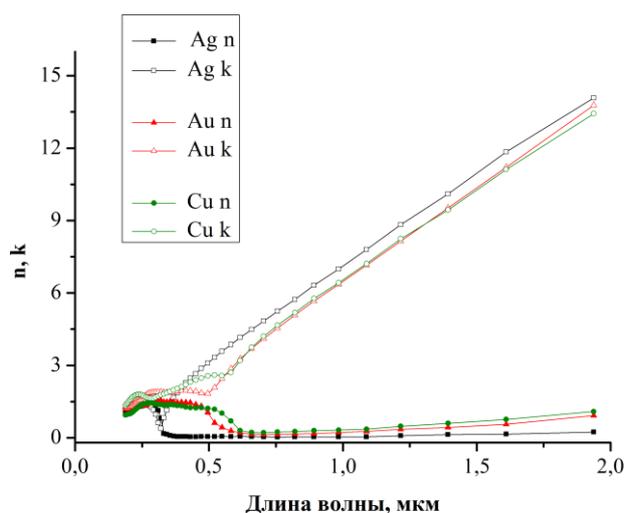


Рисунок 26. Дисперсия действительной и мнимой частей комплексной диэлектрической проницаемости Друде-материала с параметрами $\epsilon_{inf} = 1$, $\omega_{pl} = 8 \cdot 10^{15} \text{ с}^{-1}$, $\gamma = 1 \cdot 10^{15} \text{ с}^{-1}$.

На рисунке 27 а представлены измеренные спектральные зависимости показателей преломления и поглощения для серебра, золота и меди. Рисунок 27 б показывает рассчитанные дисперсии действительной и мнимой частей диэлектрической проницаемости для данных материалов. Данные взяты из [1]. Из рисунков видно, что дисперсии реальных металлов существенно отличаются от поведения Друде-материалов в коротковолновой области спектра, что говорит о существенно влиянии межзонных переходов на свойства металлов.

а



б

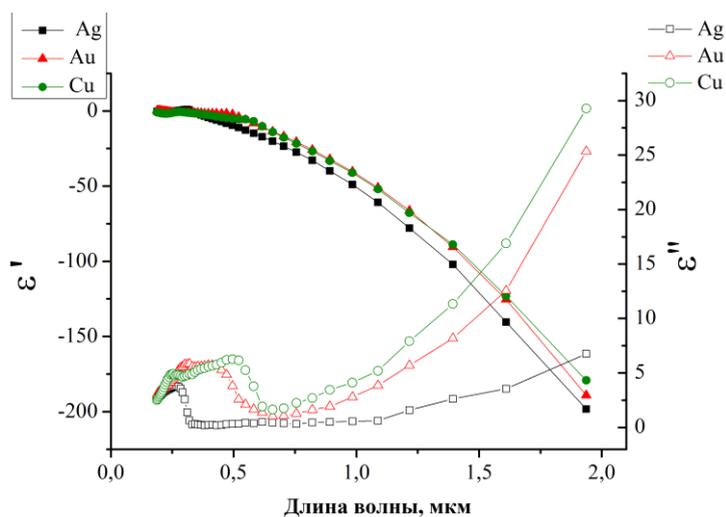
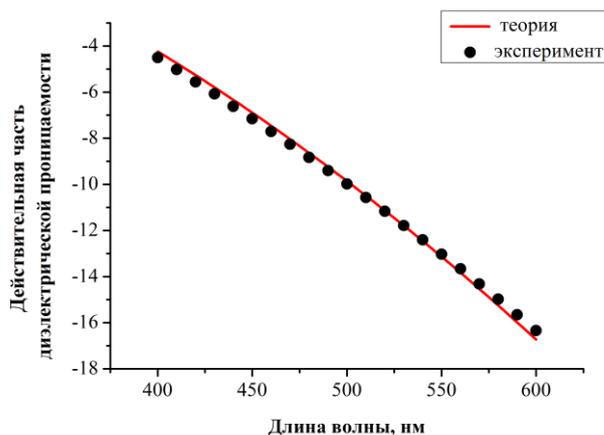


Рисунок 27. а - зависимости от длины волны показателей преломления и поглощения для Ag, Au, Cu. б - зависимости от длины волны действительной и мнимой частей диэлектрической проницаемости для тех же металлов

Для решения некоторых задач необходимо иметь аналитически заданную дисперсию диэлектрической проницаемости реальных металлов. Ранее мы обсуждали, что описать диэлектрическую проницаемость реальных металлов можно с помощью модели Друде-Лоренца согласно соотношению (8). Однако подбор лоренцевых контуров является трудоемкой задачей. Для преодоления этой проблемы ограничимся узким спектральным диапазоном и аппроксимируем дисперсию диэлектрической проницаемости с помощью соотношений (1), (4) или (5).

На рисунке 28 приведены экспериментальные дисперсии диэлектрических проницаемостей серебра и их аппроксимации с помощью соотношения (5). Для аппроксимации использовались параметры $\varepsilon_{inf}=2.4$, $\omega_{pl}=14.9 \cdot 10^{15} \text{ с}^{-1}$, $\gamma_0=5.5 \cdot 10^{13} \text{ с}^{-1}$. Из рисунка видно, что при данных параметрах было достигнуто хорошее совпадение расчетных и экспериментальных данных для действительной части диэлектрической проницаемости, в то время как для мнимой части наблюдается расхождение в коротковолновой области спектра, что объясняется влиянием межзонных переходов, которые не были учтены в аппроксимирующей функции. Пример расчета диэлектрической проницаемости и сравнения ее с экспериментальными данными приведен в приложении 3.

а



б

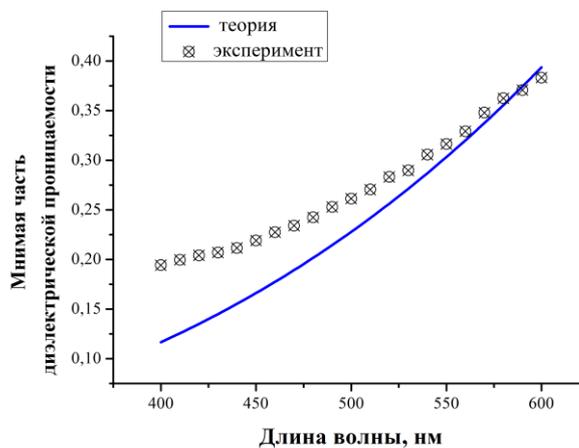


Рисунок 28. Экспериментальные и расчетные дисперсии диэлектрической проницаемости серебра. Расчет выполнен в рамках Друде-модели с параметрами материала $\varepsilon_{inf}=2.4$, $\omega_{pl}=14.9 \cdot 10^{15} \text{ с}^{-1}$, $\gamma_0=5.5 \cdot 10^{13} \text{ с}^{-1}$, экспериментальные данные взяты из [1]

1.2 ДИЭЛЕКТРИЧЕСКАЯ ПРОНИЦАЕМОСТЬ ДРУДЕ-МАТЕРИАЛОВ. УЧЕТ РАЗМЕРА ЧАСТИЦ

Для маленьких частиц вступает в действие специфический механизм, связанный с рассеянием электронов на поверхности наночастицы. Он становится особенно существенным, если размеры частицы меньше, чем длина свободного пробега электрона в объемном материале. В этом случае размер частицы является тем максимальным расстоянием, которое электрон может пролететь без рассеяния, что схематически показано на рис. 29.

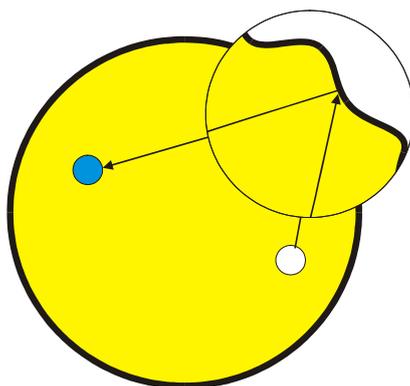


Рисунок 29. Рассеяние электронов на поверхности сокращает максимальную эффективную длину свободного пробега до размеров частицы.

Для учета рассеяния на поверхности нам будет необходимо напрямую модифицировать дисперсию диэлектрической проницаемости. С учетом рассеяния электронов на поверхности частицы представим скорость релаксации γ как

$$\gamma = \gamma_0 + A \frac{v_F}{a}, \quad (11)$$

где γ_0 – скорость релаксации, определяемая объемными свойствами вещества, A – безразмерный коэффициент, по величине близкий к единице, v_F – скорость электронов на поверхности Ферми. Для величины A существует ряд теоретических оценок, однако они не полностью согласуются друг с другом. В дальнейшем будем считать, что $A=1$. Величины скорости Ферми для ряда металлов согласно [7] можно найти в приложении 4.

Перепишем ранее полученные выражения (1), (4) и (5) с учетом (11):

$$\varepsilon(\omega, a) = \varepsilon_{inf} - \frac{\omega_{pl}^2}{\omega(\omega + i[\gamma_0 + A \frac{v_F}{a}])}, \quad (12)$$

$$\varepsilon(\omega, a) = \left[\varepsilon_{inf} - \frac{\omega_{pl}^2}{\omega^2 + [\gamma_0 + A \frac{v_F}{a}]^2} \right] + i \left[\frac{\omega_{pl}^2 \gamma}{\omega(\omega^2 + [\gamma_0 + A \frac{v_F}{a}]^2)} \right], \quad (13)$$

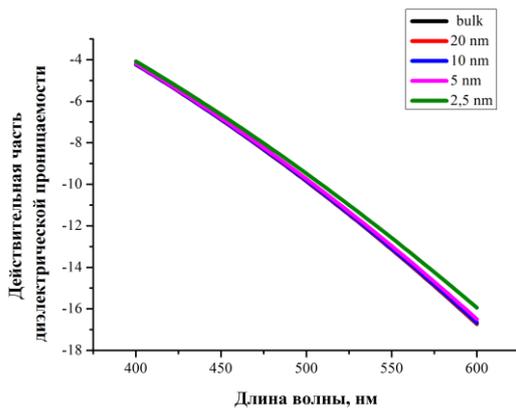
$$\varepsilon(\lambda, a) = \left[\varepsilon_{inf} - \frac{\lambda^2 \lambda_\gamma^2}{\lambda_{pl}^2 (\lambda^2 + \lambda_\gamma^2)} \right] + i \left[\frac{\lambda^3 \lambda_\gamma}{\lambda_{pl}^2 (\lambda^2 + \lambda_\gamma^2)} \right], \quad (14)$$

$$\lambda_{pl} = \frac{2\pi c}{\omega_{pl}},$$

$$\lambda_\gamma = \frac{2\pi c}{\gamma_0 + A \frac{v_F}{a}}.$$

Проследим эволюцию дисперсий диэлектрической проницаемости с учетом рассеяния электронов на поверхности наночастиц. Из рисунка 30 а видно, что действительная часть диэлектрической проницаемости меняется слабо. Уменьшение радиуса наночастиц приводит к незначительному уменьшению модуля действительной части диэлектрической проницаемости. В то же время наблюдается резкий рост мнимой части диэлектрической проницаемости с уменьшением размера наночастиц (рис. 30 б). Пример расчета дисперсий действительной и мнимой частей диэлектрической проницаемости с учетом рассеяния электронов на поверхности наночастиц приведен в приложении 5.

а



б

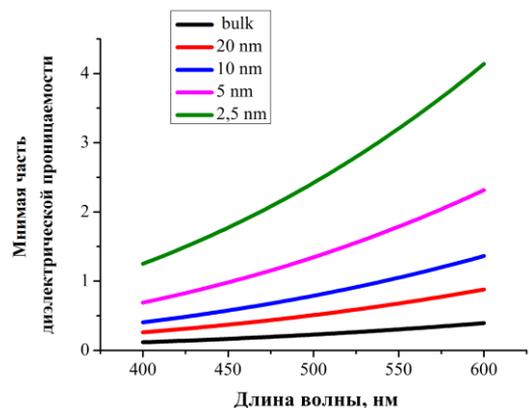


Рисунок 30. Эволюция дисперсии диэлектрической проницаемости при уменьшении размера наночастиц. Расчет проводился с помощью соотношений (14) при параметрах $\varepsilon_{inf}=2.4$, $\omega_{pl}=14.9 \cdot 10^{15} \text{ с}^{-1}$, $\gamma_0=5.5 \cdot 10^{13} \text{ с}^{-1}$, $A=1$, $v_F = 1,39 \cdot 10^6 \text{ м/с}$

1.3 ПЕРЕМЕННЫЙ ЭЛЕКТРИЧЕСКИЙ ТОК В МЕТАЛЛАХ. ОПРЕДЕЛЕНИЕ ВРЕМЕНИ ЗАТУХАНИЯ НАПРАВЛЕННОГО ДВИЖЕНИЯ НОСИТЕЛЕЙ ЗАРЯДА

Наличие свободных носителей заряда в металлах приводит к возникновению электрического тока под действием приложенного электрического поля. Можно показать, что для Друде-материалов проводимость (σ) в переменных гармонических полях описывается выражением

$$\sigma(\omega) = \frac{\sigma_0}{1 - i\omega\tau}, \quad (12)$$

где σ_0 – статическая проводимость, задаваемая соотношением

$$\sigma_0 = \frac{q_e^2 n_e \tau}{m}, \quad (13)$$

Рассмотрим, к чему приводит эта формула в предельных случаях больших и малых частот. Границей, разделяющей эти случаи, является частота, равная обратному времени релаксации.

$$\sigma(\omega) = \frac{\sigma_0}{1 - i\omega\tau} = \begin{cases} \sigma_0, \omega \ll \frac{1}{\tau}; \\ \frac{\sigma_0}{-i\omega\tau} = i \frac{q_e^2 n_e}{m\omega}, \omega \gg \frac{1}{\tau}. \end{cases} \quad (14)$$

Очевидно, что при частотах, много меньших обратного времени релаксации, проводимость сводится к статической проводимости. Интересно, что при частотах, много больших обратного времени релаксации, проводимость перестает зависеть от времени релаксации. В этом случае конечное сопротивление не связано с релаксационными процессами, а полностью определяется инерционностью электронов. Это видно и из того, что комплексная проводимость чисто мнима, что означает отставание по фазе тока от вызывающего его электрического поля на 90 градусов. При таком соотношении между фазами плотности тока и напряженности электрического тока в среднем за период поле не совершает над зарядами никакой работы.

Проиллюстрируем полученные соотношения. Построим зависимости действительной и мнимой части проводимости от частоты для некоего Друде-материала с параметрами $\sigma_0 = 10^{16} \text{ с}^{-1}$; $\tau = 10^{-14} \text{ с}$ (рисунок 31). Необходимо отметить, что в данном практикуме расчеты ведутся в системе единиц СГС. Для удобства по оси абсцисс будет использоваться логарифмический масштаб. Пример расчета дисперсий действительной и

мнимой части проводимости с использованием Wolfram Mathematica приведен в приложении 6.

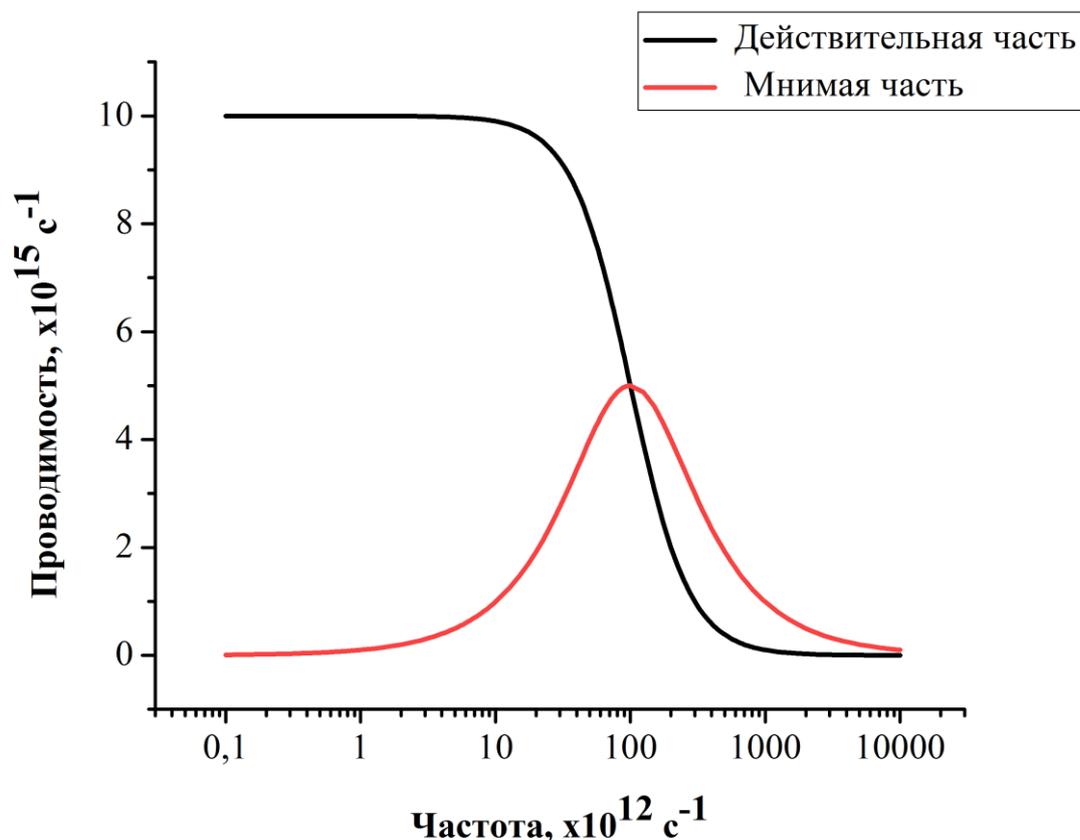


Рисунок 31. Дисперсия действительной и мнимой части проводимости Друде-материала с параметрами $\sigma_0 = 10^{16} \text{ c}^{-1}$; $\tau = 10^{-14} \text{ c}$.

Из соотношения (12) можно показать, что дисперсия мнимой части проводимости будет достигать максимума на частоте

$$\omega' = \frac{1}{\tau} = \gamma. \quad (15)$$

Данное соотношение оказывается весьма полезным, так как позволяет оценивать время и скорость релаксации направленного движения заряда.

Кроме того, полезным оказывается построение, при котором по оси абсцисс откладывается действительная часть проводимости, а по оси ординат – мнимая. Такое построение называют диаграммами Коул-Коула (рисунок 32). Подобным построением часто пользуются и в других разделах науки и техники, таких как импеданс-спектроскопия, электротехника, диэлектрическая спектроскопия, так как позволяет анализировать релаксационные процессы. В случае Друде-материалов диаграмма Коул-

Коула представляет собой полуокружность, центр которой лежит на действительной оси в точке $\sigma_0/2$.

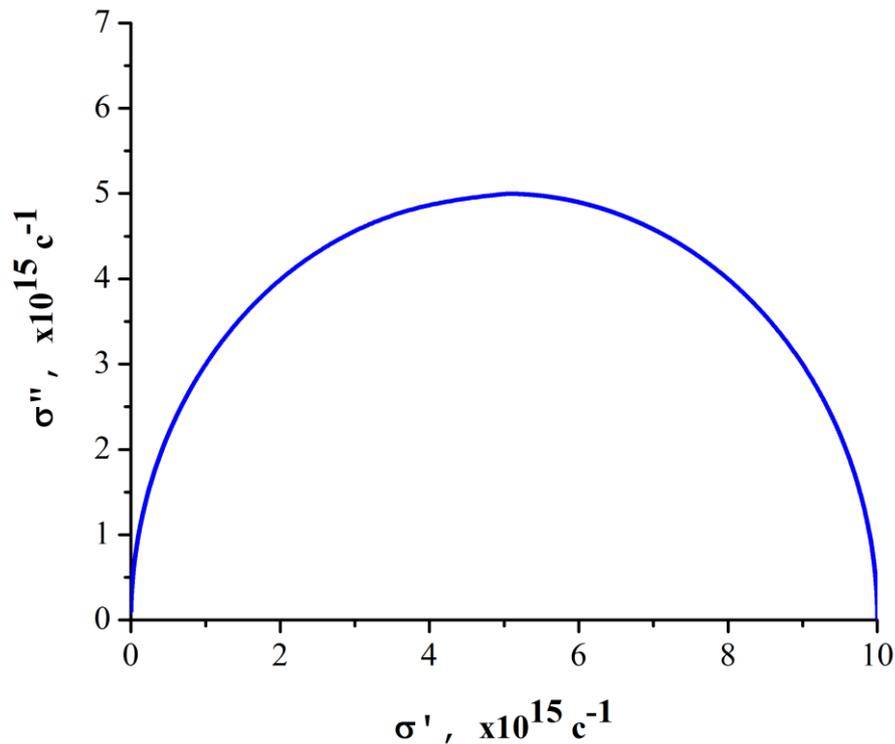


Рисунок 32 Диаграмма Коул-Коула проводимости Друде-материала с параметрами $\sigma_0 = 10^{16} \text{ c}^{-1}$; $\tau = 10^{-14} \text{ c}$.

Полуокружность начинается на действительной оси в точке σ_0 , соответствующей статической проводимости, и заканчивается в начале координат. Радиус полуокружности равен $\sigma_0/2$.

Рассмотрим теперь случай реального металла. Запишем соотношение, позволяющее однозначно связать комплексные проводимость и диэлектрическую проницаемость:

$$\varepsilon = 1 + \frac{4\pi i \sigma}{\omega}, \quad (16)$$

Так как в экспериментальных данных чаще встречаются зависимости оптических и диэлектрических констант от длины волны, перепишем выражение (16) как

$$\sigma = \frac{\omega(\varepsilon - 1)}{4\pi i} = \frac{c(\varepsilon - 1)}{\lambda 2i}. \quad (17)$$

Рассмотрим дисперсии действительной и мнимой части проводимости серебра. Зная показатель преломления и поглощения серебра в ИК области спектра, рассчитаем дисперсии проводимости с учетом соотношений (9), (10), (17). Необходимо отметить, что для анализа выбрана ИК область спектра, так как в более коротковолновой области вклад межзонных электронных переходов оказывается существенным. Вклад межзонных переходов приводит к невозможности описания дисперсии проводимости в рамках Друде-модели. Пример расчета дисперсий проводимости при известных дисперсиях оптических констант представлен в приложении 7. На рисунке 33 представлены дисперсии действительной и мнимой частей проводимости серебра, рассчитанные с использованием данных из [1].

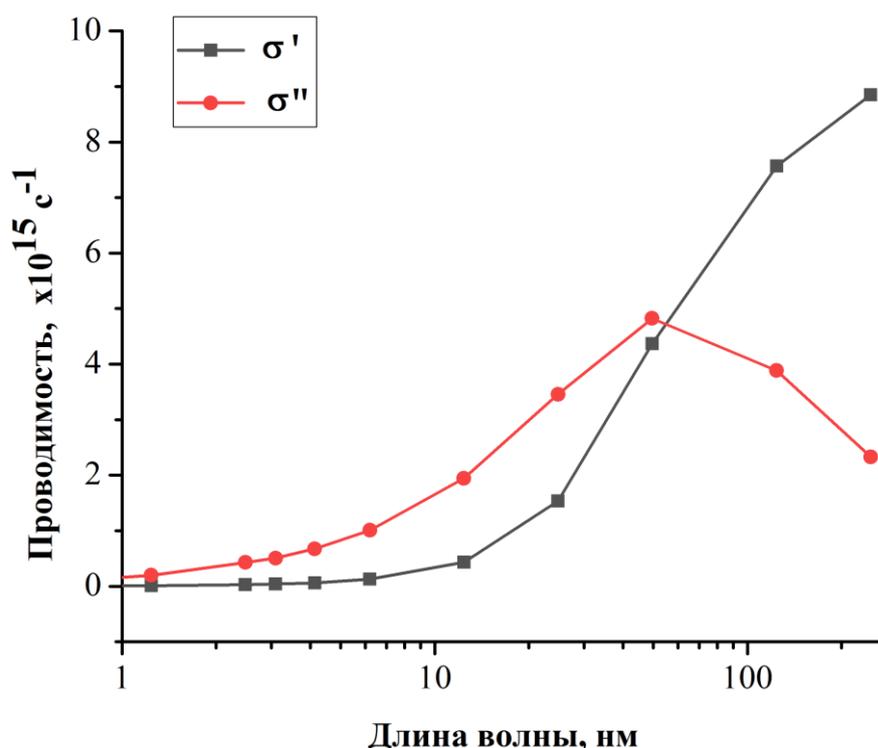


Рисунок 33 Дисперсии действительной и мнимой частей проводимости серебра, построенные с использованием данных из [1].

Оценим время релаксации направленного движения заряда. Из графика (рисунок 33) видно, что максимальное значение мнимой части проводимости наблюдается на длине волны 49,6 нм, что соответствует частоте $\omega = \frac{2\pi c}{\lambda} \sim 0,37 \cdot 10^{14} \text{ c}^{-1}$. С учетом выражения (15) можно утверждать, что время релаксации направленного движения заряда $\tau = 2,7 \cdot 10^{-14} \text{ c}$, а скорость релаксации $\gamma = 3,7 \cdot 10^{13}$. Здесь необходимо отметить, что ряд факторов, таких как рассеяние электронов на поверхности и излучение вторичных

электромагнитных волн, будет приводить к увеличению скорости релаксации, что существенно затрудняет анализ экспериментальных данных.

Построим диаграмму Коул-Коула для рассмотренного случая. Для аппроксимации данных будем использовать уравнение, задающее полуокружность, центр которой лежит на оси абсцисс $y = \sqrt{r^2 - (x - x_0)^2}$. Данные представлены на рисунке 34. Пример построения диаграммы Коул-Коула для случая реального металла и аппроксимация ее полуокружностью приведен в приложении 8

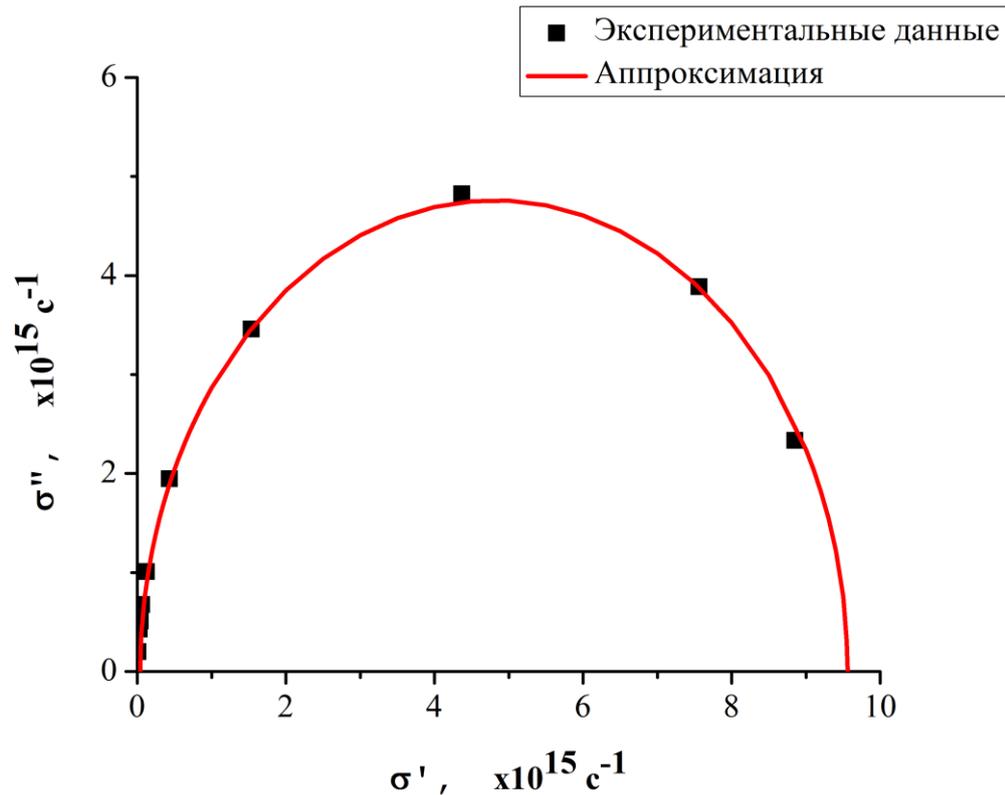


Рисунок 34 Диаграмма Коул-Коула для случая серебра и ее аппроксимация с помощью полуокружности. Данные для построения зависимости взяты из [1]

1.4 УСИЛЕНИЕ ПОЛЯ ВНУТРИ И ВОКРУГ СФЕРИЧЕСКИХ НАНОЧАСТИЦ

Ранее мы говорили, что плазмонная наночастица взаимодействует не только с потоком света, падающим непосредственно на нее, но и со светом, проходящим через площадь, намного превышающую геометрическое сечение частицы. При этом электрическое поле усиливается как внутри плазмонной наночастицы, так и вблизи нее.

Для простоты решения наложим ограничение на размер наночастиц. Их размер должен быть существенно меньше длины волны падающего излучения. В таком случае можно считать, что частица находится в однородном электрическом поле E (рисунок 35). Такое допущение называется квазистатическим приближением. В квазистатическом приближении смещение электронов проводимости приводит к поляризации наночастицы и возбуждению дипольного момента p (рисунок 35). На рисунке 35 векторы поляризации и напряженности электрического поля противоположны, однако необходимо учитывать, что так бывает не всегда. Так как поляризуемость плазмонных частиц является комплексной величиной, фазы внешнего поля и наведенного в частице дипольного момента не совпадают, но и не всегда отличаются на полпериода, как представлено на рис. 35. В общем случае разность фаз внешнего поля и наведенного в частице дипольного момента определяется фазой поляризуемости.

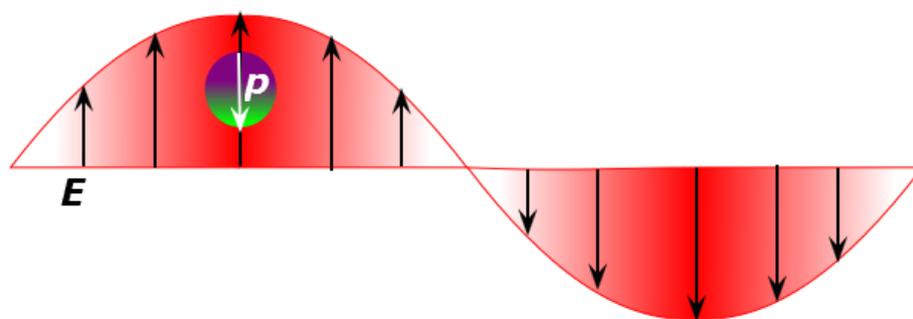


Рисунок 35. Плазмонная наночастица в поле падающей волны.

Рассмотрим случай сферической наночастицы. В квазистатическом приближении внешнее поле считается однородным. В этом случае поляризация сферической наночастицы приводит к формированию однородного поля внутри нее, а поле вне наночастицы оказывается таким, как если бы в центре наночастицы находился электрический диполь. Схематично поле внутри и вне наночастицы показано на рисунке 36. Здесь и далее будем считать, что вектор электрического поля падающей волны

совершает колебания вдоль оси ОУ. Центр наночастицы совпадает с началом координат.

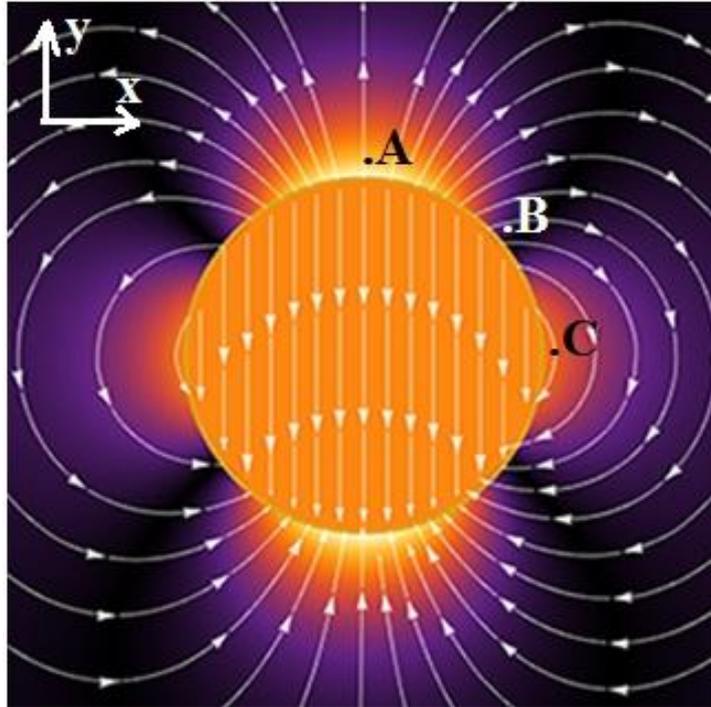


Рисунок 36. Поле, создаваемое внутри и вокруг сферической наночастицы, помещенной во внешнее однородное поле, ориентированное вдоль оси ОУ [8]

Поле внутри наночастицы (E_{in}), помещенной во внешнее поле (E_0), можно рассчитать как

$$\vec{E}_{in} = \frac{3\varepsilon_D}{\varepsilon_m + 2\varepsilon_D} \vec{E}_0, \quad (18)$$

где ε_m – диэлектрическая проницаемость материала наночастицы, ε_D – диэлектрическая проницаемость окружающей среды

В практических целях наиболее интересна не сама величина внутреннего поля, а отношение квадратов модулей величин падающего и внешнего поля:

$$\left(\frac{|\vec{E}_{in}|}{|\vec{E}_0|} \right)^2 = \left| \frac{3\varepsilon_D}{\varepsilon_m + 2\varepsilon_D} \right|^2. \quad (19)$$

На рисунке 37 представлена спектральная зависимость коэффициента усиления поля внутри наночастицы $\left(\frac{|\vec{E}_{in}|}{|\vec{E}_0|} \right)^2$ для сферической частицы, сделанной из Друде-материала с параметрами $\varepsilon_{inf}=1$, $\omega_{pl}=8 \cdot 10^{15} \text{ с}^{-1}$,

$\gamma=1 \cdot 10^{15} \text{ c}^{-1}$. В приложении 9 показан пример расчета усиления поля внутри наночастицы.

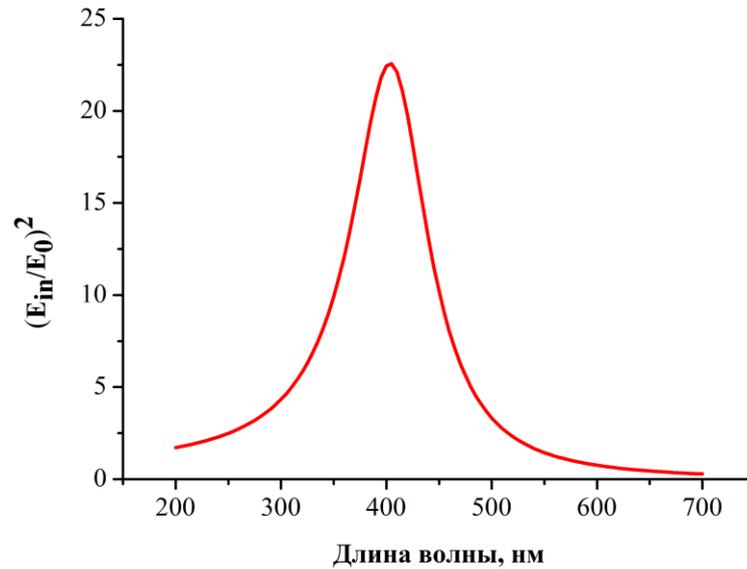


Рисунок 37. Спектральная зависимость усиления поля внутри плазмонной наночастицы из Друде материала с параметрами $\varepsilon_{inf}=1$, $\omega_{pl}=8 \cdot 10^{15} \text{ c}^{-1}$, $\gamma=1 \cdot 10^{15} \text{ c}^{-1}$

Согласно принципу суперпозиции результирующее поле снаружи наночастицы \vec{E}_{out} определяется векторной суммой падающего поля \vec{E}_0 и локального поля диполя наночастицы \vec{E}_d :

$$\vec{E}_{out} = \vec{E}_0 + \vec{E}_d. \quad (20)$$

При этом поле диполя можно записать как

$$\vec{E}_d = \frac{3(\vec{p} \cdot \vec{r}) \cdot \vec{r}}{r^5} - \frac{\vec{p}}{r^3}, \quad (21)$$

где \vec{r} – радиус-вектор, проведенный из центра плазмонной частицы к точке наблюдения, вектор поляризации \vec{p} сферической наночастицы описывается соотношением

$$\vec{p} = \frac{\varepsilon_m - \varepsilon_D}{\varepsilon_m + 2\varepsilon_D} a^3 \vec{E}_0, \quad (22)$$

где a – радиус наночастицы.

Необходимо помнить, что модуль вектора \vec{r} должен быть больше радиуса частицы a , так как в противном случае точка наблюдения находится внутри наночастицы, и поле в ней описывается соотношениями (18) – (19).

Как и в случае с внутренним полем, прикладной интерес представляет отношение падающего поля и локального поля наночастицы $\left(\frac{|\vec{E}_{out}|}{|\vec{E}_0|}\right)^2$:

$$\left(\frac{|\vec{E}_{out}|}{|\vec{E}_0|}\right)^2 = \left(\frac{|\vec{E}_0 + \frac{3(\vec{p} \cdot \vec{r}) \cdot \vec{r}}{r^5} - \frac{\vec{p}}{r^3}|}{|\vec{E}_0|}\right)^2. \quad (23)$$

Стоит заметить, что расчет величины поля непосредственно на поверхности наночастицы является вопросом нетривиальным. Подобный расчет не может быть выполнен в рамках классических представлений.

Для простоты расчетов остановимся на рассмотрении поля в точках А и С, которые лежат на оси ОУ и ОХ соответственно (рисунок 35). В этих точках отсутствует компонента поля, направленная вдоль оси ОХ.

Пусть радиус вектор к точке А имеет координаты $\{0, r_{Ay}\}$, тогда поле диполя в точке А записывается как

$$\begin{aligned} E_{dAx} &= 0, \\ E_{dAy} &= \frac{2p_{Ay}}{r_{Ay}^3}. \end{aligned} \quad (24)$$

С учетом (20) и (22) получаем

$$\left(\frac{|E_{outA}|}{|\vec{E}_0|}\right)^2 = \left|1 + 2\left(\frac{a}{r_{Ay}}\right)^3 \frac{\varepsilon_m - \varepsilon_D}{\varepsilon_m + 2\varepsilon_D}\right|^2. \quad (25)$$

Аналогичным образом можно получить соотношения для точки С с радиус-вектором $\{r_{Cx}, 0\}$

$$\begin{aligned} E_{dAx} &= 0, \\ E_{dCy} &= -\frac{p_{Cy}}{r_{Ax}^3}, \end{aligned} \quad (26)$$

$$\left(\frac{|E_{outC}|}{|\vec{E}_0|}\right)^2 = \left|1 - \left(\frac{a}{r_{Ax}}\right)^3 \frac{\varepsilon_m - \varepsilon_D}{\varepsilon_m + 2\varepsilon_D}\right|^2. \quad (27)$$

Анализируя выражения 24-27, можно заметить, что интенсивность усиленного поля вокруг наночастицы неоднородна, что связано с неоднородностью поля диполя наночастицы. Так же можно увидеть, что

интенсивность поля зависит от соотношения радиуса наночастицы и радиус-вектора до точки наблюдения и диэлектрических свойств наночастицы и окружающей среды.

В точке В на рисунке 36 поле диполя уже будет иметь обе компоненты, E_{dBx} и E_{dBy} . В таком случае для расчета интенсивности усиленного поля необходимо воспользоваться соотношением 23.

На рисунке 38 представлены спектральные зависимости усиления поля вблизи плазмонной наночастицы в точках, лежащих на осях ОХ и ОУ на разных расстояниях от поверхности наночастицы (серия точек А и С, рисунок 35). Свойства материала наночастицы описываются Друде-моделью с параметрами $\varepsilon_{inf}=1$, $\omega_{pl}=8 \cdot 10^{15} \text{ с}^{-1}$, $\gamma=1 \cdot 10^{15} \text{ с}^{-1}$. Из рисунка видно, что наибольший коэффициент усиления достигается вблизи поверхности наночастицы в точках, лежащих на оси, проходящей через центр наночастицы параллельно напряженности падающего электрического поля. По мере удаления от поверхности наночастицы амплитуда усиленного поля быстро падает. Пример расчета спектральных зависимостей усиления поля в точках А и С представлен в приложении 10.

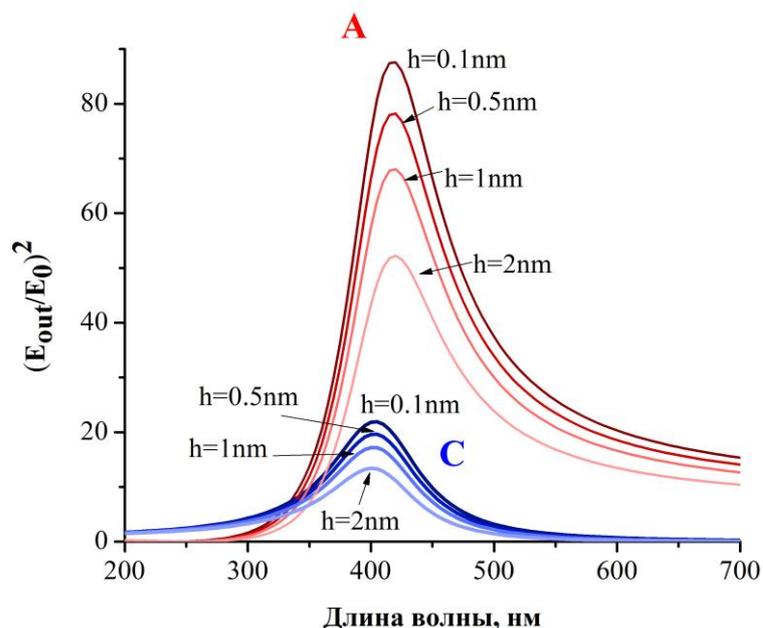


Рисунок 38. Спектральная зависимость усиления поля около плазмонной наночастицы в точках, лежащих на оси ОУ (А) и ОХ (С) на расстоянии 0.1-2 нм от поверхности наночастицы. Падающее поле поляризовано вдоль оси ОУ. Наночастица радиусом 20 нм изготовлена из Друде материала с параметрами $\varepsilon_{inf}=1$, $\omega_{pl}=8 \cdot 10^{15} \text{ с}^{-1}$, $\gamma=1 \cdot 10^{15} \text{ с}^{-1}$ и находится в вакууме

1.5 ВОЗБУЖДЕНИЕ ЛОКАЛИЗОВАННОГО ПЛАЗМОНА В СФЕРИЧЕСКИХ НАНОЧАСТИЦАХ. СЕЧЕНИЕ ПОГЛОЩЕНИЯ, РАССЕЯНИЯ И ЭКСТИНКЦИИ. КВАЗИСТАТИЧЕСКОЕ ПРИБЛИЖЕНИЕ

Рассмотрим возбуждение локализованных плазмонных резонансов в наночастицах. Характер оптического отклика зависит от величины дипольного момента наночастицы. Для сферической наночастицы дипольный момент задается соотношением (22)

Для описания оптических свойств наночастиц используют понятия сечений поглощения (σ_{abs}), рассеяния (σ_{sca}) и экстинкции (σ_{ext}). Величины этих сечений определяют доли энергии падающего излучения, приходящиеся на поглощение, рассеяние и на их сумму, соответственно. Поглощение энергии связано с переходом электромагнитной энергии в тепловую вследствие коллективных колебаний электронов. Рассеяние наночастицами связано с ускоренным движением электронов во внешнем поле, что вызывает вторичные волны и переизлучение энергии. Оба процесса (рассеяние и поглощение) приводят к ослаблению светового потока в направлении распространения. При измерении пропускания (или оптической плотности) без использования дополнительного оборудования (интегрирующих сфер) мы не можем отличить вклады поглощения и рассеяния в ослабление падающего излучения. В связи с этим целесообразно ввести понятие экстинкции, при этом сечение экстинкции

$$\sigma_{ext} = \sigma_{abs} + \sigma_{sca}. \quad (28)$$

Сечения экстинкции и рассеяния частицы могут быть определены, если известна ее поляризуемость α как

$$\sigma_{ext} = \frac{4\pi n\omega}{c} \text{Im}(\alpha) = \frac{8\pi^2 n}{\lambda} \text{Im}(\alpha), \quad (29)$$

$$\sigma_{sca} = \frac{8\pi n\omega^4}{c^4} |\alpha|^2 = \frac{128\pi^5 n}{\lambda^4} |\alpha|^2, \quad (30)$$

Здесь n – показатель преломления окружающей среды. Поляризуемость сферической наночастицы радиуса a в квазистатическом приближении дается выражением

$$\alpha = \frac{\varepsilon_m - \varepsilon_D}{\varepsilon_m + 2\varepsilon_D} a^3. \quad (31)$$

В выражениях 29 и 30 частота (длина волны) входит в явном виде в первом сомножителе, а также определяет величину поляризуемости, входя в нее. Ранее уже было сказано, что в экспериментальных условиях мы измеряем экстинкцию наночастиц. В связи с этим в дальнейшем в данном практикуме для построения спектральных зависимостей мы будем пользоваться только сечением экстинкции. Относительные вклады поглощения и рассеяния в экстинкцию зависят от размера частицы. Поскольку поляризуемость малых частиц пропорциональна их объему, а сечение рассеяния – квадрату поляризуемости, рассеянием малых частиц при расчете сечения экстинкции можно пренебречь. Однако необходимо отметить, что с ростом размера частиц вклад рассеяния увеличивается и его учет становится необходимым. К этому вопросу мы обратимся в следующих разделах данного практикума. Здесь же ограничимся рассмотрением частиц, сечение рассеяния которых пренебрежимо мало.

Прикладной интерес представляет зависимость положения плазмонного резонанса сферических наночастиц от показателя преломления окружающей среды. На рисунке 39 представлены спектры сечения экстинкции наночастиц из материала с $\epsilon_{inf}=1$, $\omega_{pl}=8 \cdot 10^{15} \text{ с}^{-1}$, $\gamma=1 \cdot 10^{15} \text{ с}^{-1}$ и радиусом 20 нм в диэлектрических матрицах с различными показателями преломления. Из рисунка видно, что с увеличением показателя преломления среды наблюдается красное смещение положения плазмонного резонанса и уширение его полосы. Чувствительность плазмонных наночастиц к диэлектрическим свойствам окружающей среды находит широкое применение при разработке различных сенсоров. Пример расчета сечения экстинкции сферической наночастицы приведен в приложении 11.

Замечания

1. Сечение экстинкции рассматриваемой частицы достигает 8000 нм^2 в максимуме плазмонной полосы, при этом ее геометрическое сечение πr^2 – порядка 314 нм^2 . Это означает, что частица взаимодействует не только со световым потоком, падающим непосредственно на нее, но и с потоком, проходящим через площадь, во много раз большую ее геометрических размеров.

2. Как было указано в разделе 2.2, если размер наночастицы становится меньше длины свободного пробега электронов, то вклад рассеяния электронов на поверхности наночастиц становится существенным. Это можно учесть, модифицируя дисперсию диэлектрической проницаемости (1) путем замены параметра γ на γ' , причем $\gamma' = \gamma + \frac{Av_F}{a}$, где a – размер

наночастицы, v_F – скорость Ферми, A – безразмерный коэффициент, по величине близкий к единице.

3. Представленная выше модель описывает оптические свойства одиночной наночастицы в однородной диэлектрической матрице.

4. Если частица находится вблизи границы раздела двух сред с различными диэлектрическими проницаемостями, ее оптические свойства не могут быть рассчитаны аналитически. В этом случае необходимо пользоваться численными методами. При приближении к границе раздела двух сред происходит расщепление полосы плазмонного резонанса.

5. В рассматриваемой модели не учитывается дисперсия окружающей среды. Если в окружающей среде вблизи поверхности наночастицы наблюдается возбуждение экситона, то сильное экситон-плазмонное взаимодействие может привести к расщеплению плазмонной моды (расщепление Раби).

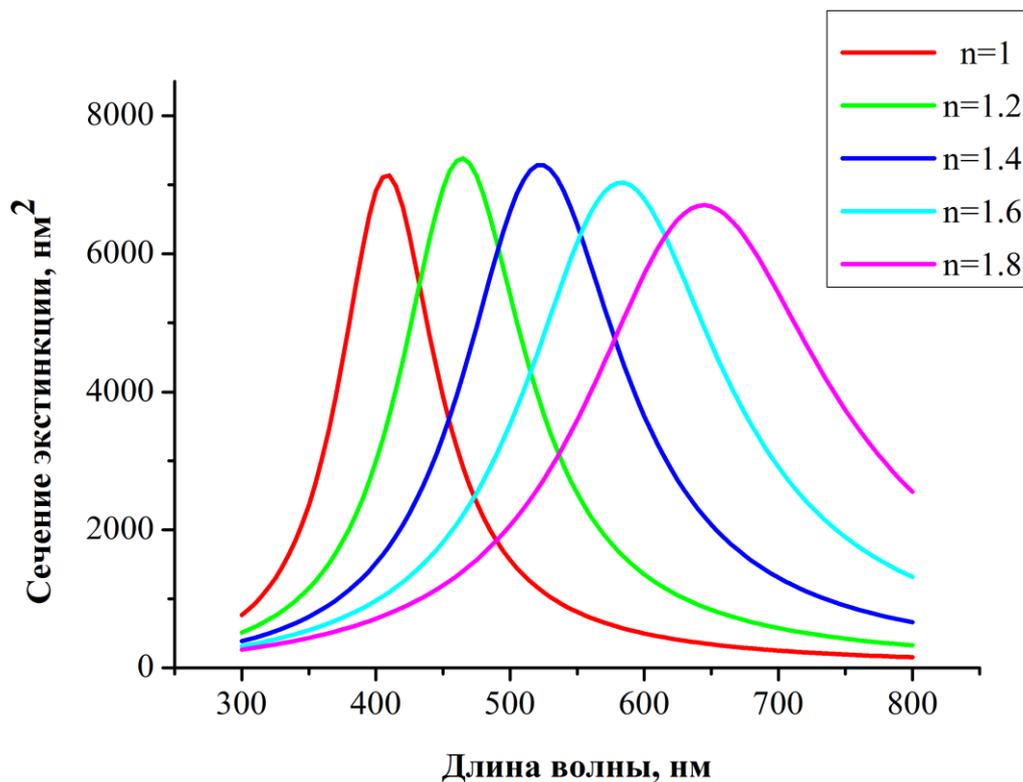


Рисунок 39. Спектры сечения экстинкции наночастиц в диэлектрических средах с показателями преломления 1 – 1,8. Радиус наночастиц 20 нм, дисперсия диэлектрической проницаемости материала наночастиц определялась параметрами $\varepsilon_{inf}=1$, $\omega_{pl}=8 \cdot 10^{15} \text{ с}^{-1}$, $\gamma=1 \cdot 10^{15} \text{ с}^{-1}$.

1.6 СЕЧЕНИЕ ПОГЛОЩЕНИЯ, РАССЕЯНИЯ И ЭКСТИНКЦИИ СФЕРИЧЕСКИХ ЧАСТИЦ. ТЕОРИЯ МИ

Требование малости наночастиц по сравнению с длиной волны падающего излучения существенно, так как при увеличении размера наночастиц мы более не можем считать поле однородным. В таком случае необходимо учитывать неоднородность поля. Неоднородность поля приводит к красному смещению положения и уширению полосы плазмонного резонанса в наночастицах. В спектрах более крупных наночастиц появляется коротковолновый пик, связанный с возбуждением квадрупольных мод. Улучшение квазистатической модели может быть сделано путем учета эффекта деполяризации, что будет продемонстрировано позже. В этом разделе мы разберем альтернативный способ расчета свойств сферически наночастиц.

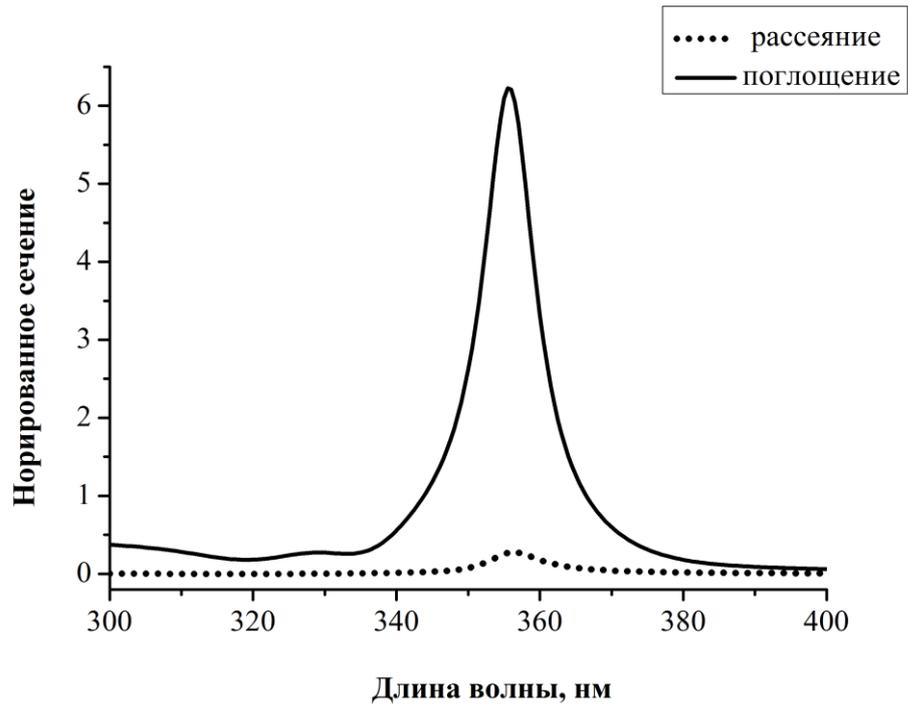
Учет реального размера сферических частиц может быть произведен с помощью расчетов в рамках теории Ми. Математическая модель теории Ми существенно сложнее модели квазистатического приближения и выходит за рамки данного курса. Для расчета спектров будем использовать существующие онлайн калькуляторы теории Ми [9-11]. В рамках теории Ми проследим, как изменяется вклад поглощения и рассеяния при изменении размера наночастиц, что позволит нам более глубоко понимать природу оптического отклика частиц с разными размерами. Рассмотрение оптических свойств металлических наноструктур в рамках теории Ми приведено в [12].

На рисунке 40 представлены спектры поглощения и рассеяния серебряных наночастиц с радиусом 10 и 40 нм, рассчитанных с помощью теории Ми. Сплошные линии соответствуют сечению поглощения, пунктирные – рассеянию.

Из рисунка 40 видно, что в случае наночастиц меньшего размера сечение поглощения превосходит сечение рассеяния. С ростом размера наночастицы рассеяние начинает доминировать над поглощением. Кроме того, в спектрах более крупных частиц начинает проявляться коротковолновый пик, связанный с возбуждением квадрупольного резонанса в наночастице. С дальнейшим ростом размера наночастиц в их спектре будут проявляться октупольные резонансы и мультипольные резонансы более высоких порядков. На рисунке 41 показана эволюция спектров сечений поглощения (а) и рассеяния (б) сферических наночастиц. С ростом размера наночастиц наблюдается красное смещение и уширение дипольной полосы (длинноволновой), равно как и рост вклада квадрупольной полосы как в спектрах поглощения, так и рассеяния. Стоит отметить, что в спектрах

поглощения наблюдается, что квадрупольная полоса становится намного интенсивнее дипольной с ростом размера наночастиц.

а



б

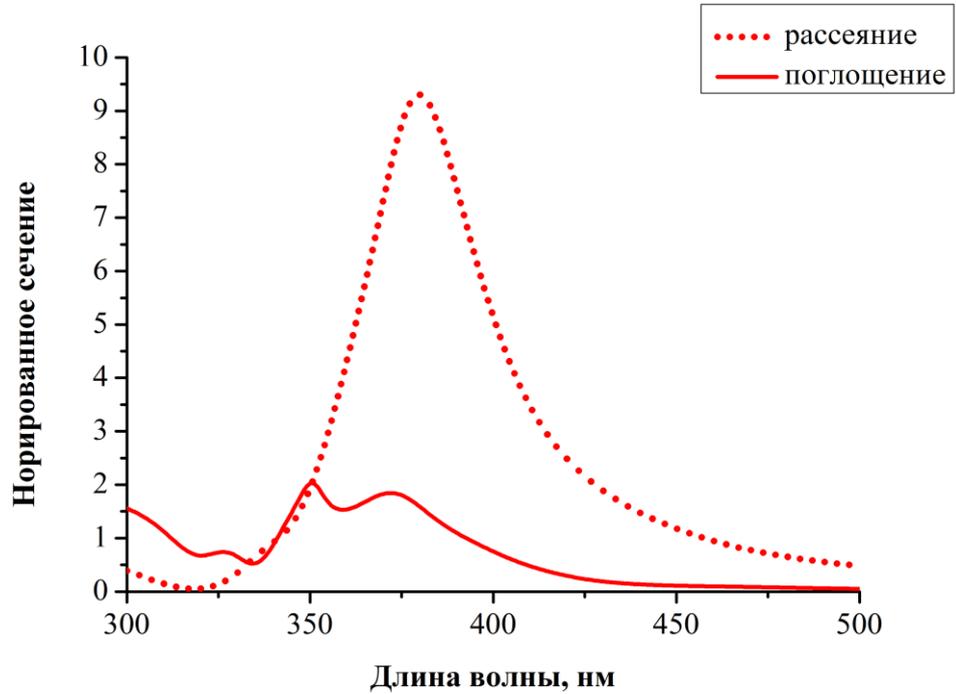
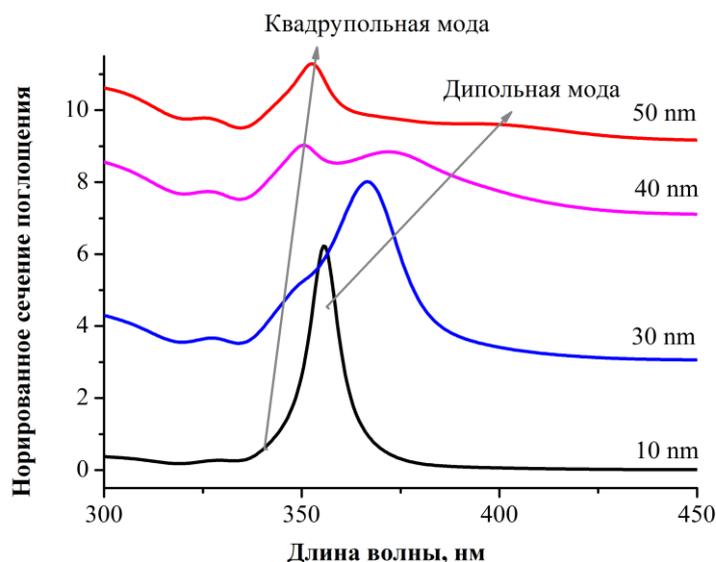


Рисунок 40. Рассчитанные спектры сечения поглощения (сплошные линии) и рассеяния (пунктирные) наночастиц серебра с радиусом 10 (а) и 40 (б) нм.

а



б

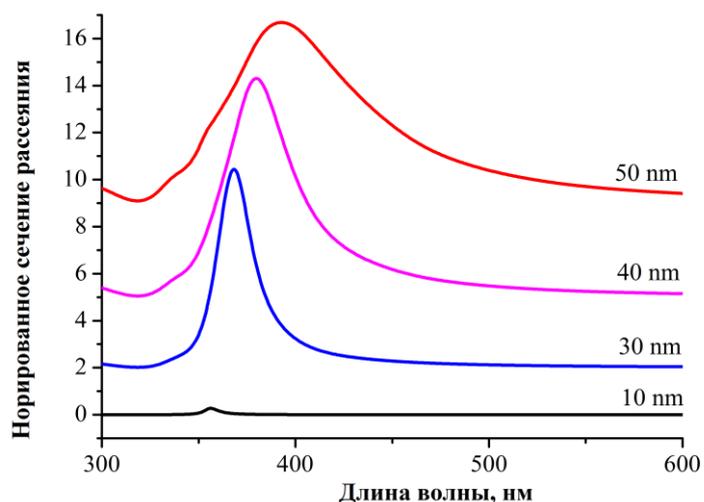
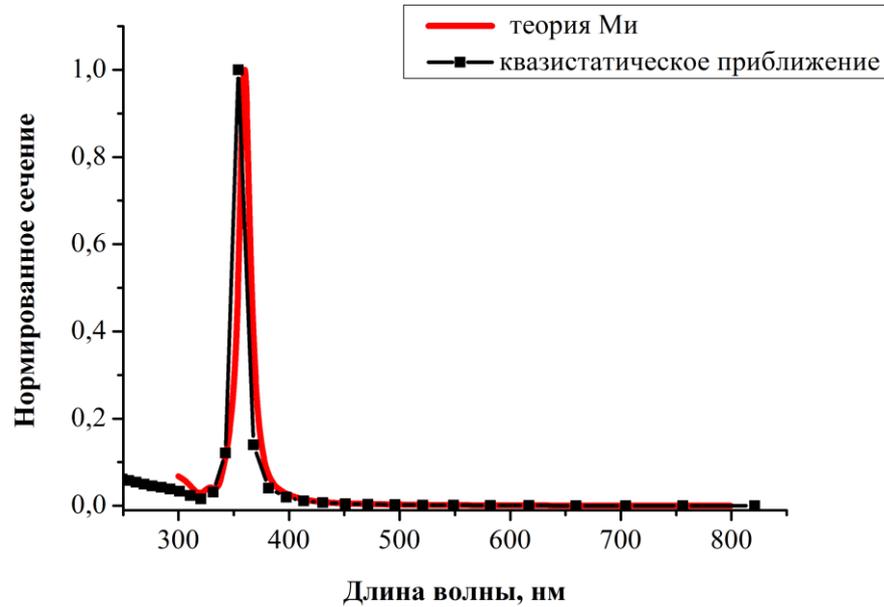


Рисунок 41. Эволюция спектров сечений поглощения (а) и рассеяния (б) сферических серебряных наночастиц с ростом их радиусов. Расчеты проводились с помощью теории Ми.

Проведем сравнение результатов, которые можно получить с помощью теории Ми и квазистатического приближения. На рисунке 42 приведено сравнение спектров экстинкции наночастиц Ag, рассчитанных с помощью квазистатического приближения и теории Ми для случая малых наночастиц (с радиусом 20 нм) и частиц большего размера (с радиусом 50 нм). Все спектры нормированы по максимуму. Из рисунка видно, что в случае наночастиц меньшего размера результаты, полученные в рамках данных моделей, дают схожие результаты. В случае более крупных частиц различие

в спектрах связано с тем, что квазистатическое приближение не учитывает неоднородность поля внутри частицы, которое оказывает существенное влияние. В приложении 12 приведена программа расчета сечений экстинкции сферической серебряной частицы в квазистатическом приближении, диэлектрические свойства которой заданы в табличном виде.

а



б

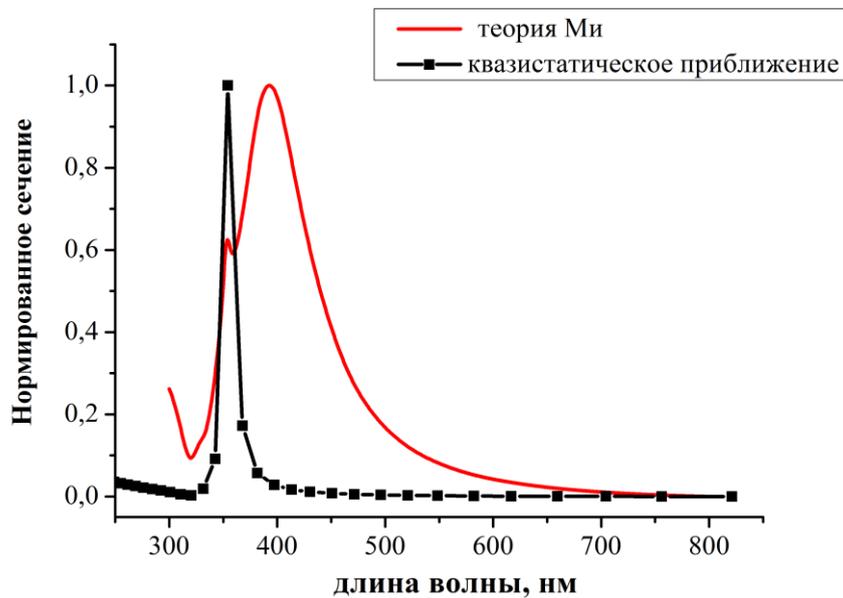


Рисунок 42. Спектры сечения экстинкции сферических серебряных наночастиц с радиусом 20 нм (а) и 50 нм (б), рассчитанные с помощью квазистатического приближения и теории Ми

1.7 ВОЗБУЖДЕНИЕ ЛОКАЛИЗОВАННОГО ПЛАЗМОНА В ЭЛЛИПСОИДАЛЬНЫХ НАНОЧАСТИЦАХ

В предыдущем разделе было рассмотрено возбуждение плазмонного резонанса в сферических частицах в квазистатическом приближении. В этом приближении можно также описать оптические свойства эллипсоидальных наночастиц. Поверхность эллипсоида задается уравнением

$$\frac{x^2}{a_{el}^2} + \frac{y^2}{b_{el}^2} + \frac{z^2}{c_{el}^2} = 1, \quad (32)$$

где a_{el} , b_{el} и c_{el} – его полуоси (рисунок 43).

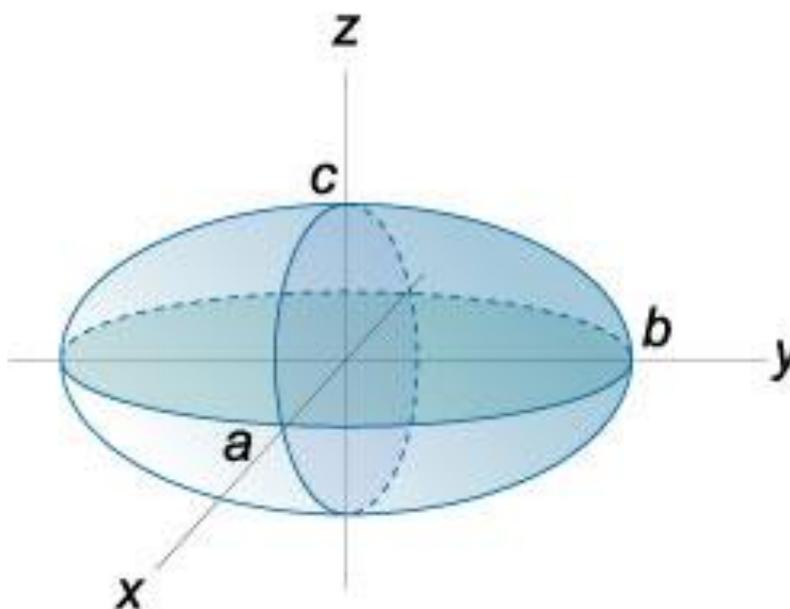


Рисунок 43. Эллипсоид с полуосями a , b и c

Эллипсоид имеет разные поляризуемости вдоль своих осей. Для каждой оси можно записать (с учетом системы координат на рисунке 43):

$$\alpha_x = a_{el}b_{el}c_{el} \frac{\frac{\epsilon_m}{\epsilon_D} - 1}{3(1 + (\frac{\epsilon_m}{\epsilon_D} - 1)L_a)}, \quad (33)$$

$$\alpha_y = a_{el}b_{el}c_{el} \frac{\frac{\epsilon_m}{\epsilon_D} - 1}{3(1 + (\frac{\epsilon_m}{\epsilon_D} - 1)L_b)}, \quad (34)$$

$$\alpha_z = a_{el} b_{el} c_{el} \frac{\frac{\varepsilon_m}{\varepsilon_D} - 1}{3(1 + (\frac{\varepsilon_m}{\varepsilon_D} - 1)L_c)}, \quad (35)$$

где L_i - факторы деполяризации, связанные с формой наночастиц. Расчет факторов деполяризации для произвольного эллипсоида сводится к вычислению определенного интеграла. Оценить значения факторов деполяризации можно с учетом того, что их сумма всегда равна единице:

$$L_a + L_b + L_c = 1, \quad (36)$$

и с некоторой точностью факторы деполяризации обратно пропорциональны полуосям эллипсоида:

$$a_{el} : b_{el} : c_{el} \approx \frac{1}{L_a} : \frac{1}{L_b} : \frac{1}{L_c}. \quad (37)$$

Наличие трех дипольных мод в эллипсоидальных наночастицах приводит к расщеплению плазмонного резонанса. В идеальном случае, когда вектор напряженности электрического поля линейно поляризованного света совершает колебания строго вдоль одной из осей эллипсоида, в спектре экстинкции будет наблюдаться полоса, соответствующая единственной моде колебаний. В случае же произвольной ориентации эллипсоида относительно поляризации линейно поляризованного излучения, а также в общем случае неполяризованного света и неупорядоченного массива произвольно ориентированных наночастиц в спектрах экстинкции будут наблюдаться полосы, соответствующие возбуждению всех трех мод плазмонных колебаний эллипсоидальной наночастицы.

Для расчета сечений экстинкций для каждой дипольной моды эллипсоидальной наночастицы будем использовать формулу (29) с учетом соотношений (33) – (35). На рисунке 44 приведены спектры сечения экстинкции для трех мод эллипсоида с полуосями $a_{el}=30$, $b_{el}=20$, $c_{el}=10$ нм. Параметры материала наночастицы $\varepsilon_{inf}=1$, $\omega_{pl}=8 \cdot 10^{15} \text{ с}^{-1}$, $\gamma=1 \cdot 10^{15} \text{ с}^{-1}$. В расчете принималось, что наночастица находится в вакууме. В приложении 13 приведен пример расчета спектров экстинкции для эллипсоидальной частицы в квазистатической модели. Из рисунка видно, что с увеличением длины полуоси происходит красное смещение полосы плазмонного резонанса.

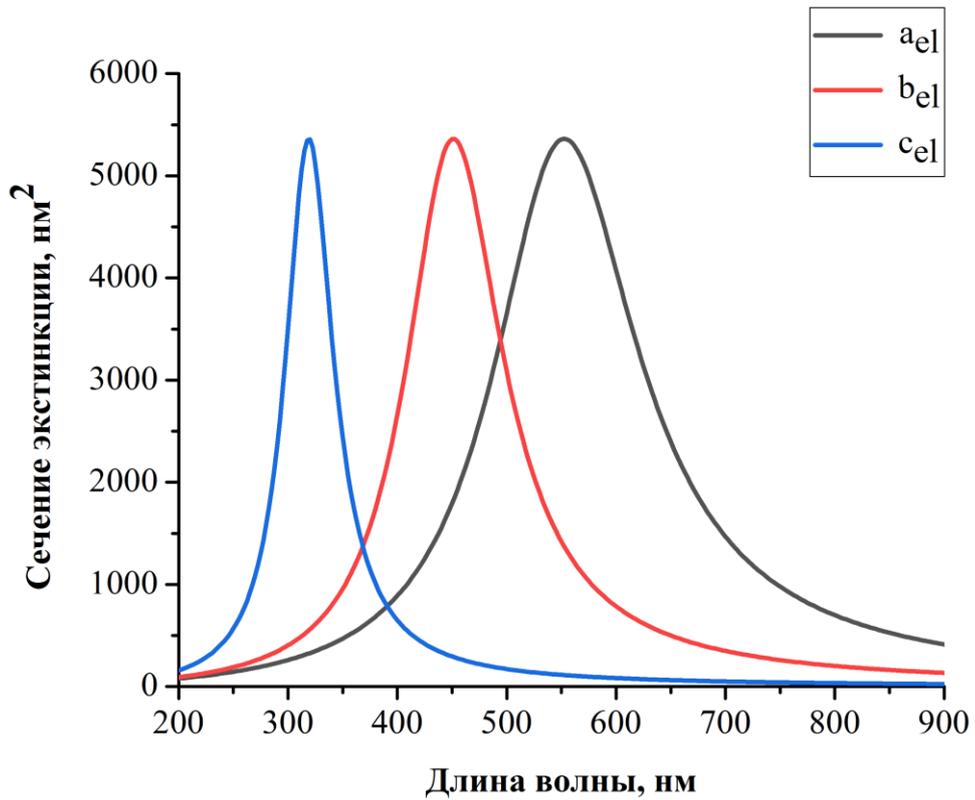


Рисунок 44. Спектры сечений экстинкции для трех мод плазмонного резонанса эллипсоидальной наночастицы при ориентации вектора напряженности электрического поля падающей волны вдоль осей $a_{el}=30$ нм, $b_{el}=20$ нм и $c_{el}=10$ нм. Наночастица находится в вакууме. Параметры материала наночастицы $\epsilon_{inf}=1$, $\omega_{pl}=8 \cdot 10^{15} \text{ с}^{-1}$, $\gamma=1 \cdot 10^{15} \text{ с}^{-1}$

1.8 ВОЗБУЖДЕНИЕ ЛОКАЛИЗОВАННОГО ПЛАЗМОНА В СФЕРОИДАЛЬНЫХ НАНОЧАСТИЦАХ. ЭКСЦЕНТРИСИТЕТ СФЕРОИДАЛЬНЫХ НАНОЧАСТИЦ

Рассмотрим эллипсоидальную наночастицу, у которой размеры двух полуосей совпадают. Такие наночастицы называются сфероидальными. Различают сплюснутые и вытянутые сфероиды (рисунок 45). Для унификации будем считать, что большая (большие полуоси) равны a , меньшая (меньшие) равны b . В этом разделе мы будем проводить сравнение спектральных характеристик наночастиц различной формы. Для сравнения будем брать наночастицы одинакового объема (для выполнения этого условия необходимо, чтобы произведения всех полуосей частиц были равны – равные полуоси учитываются дважды).

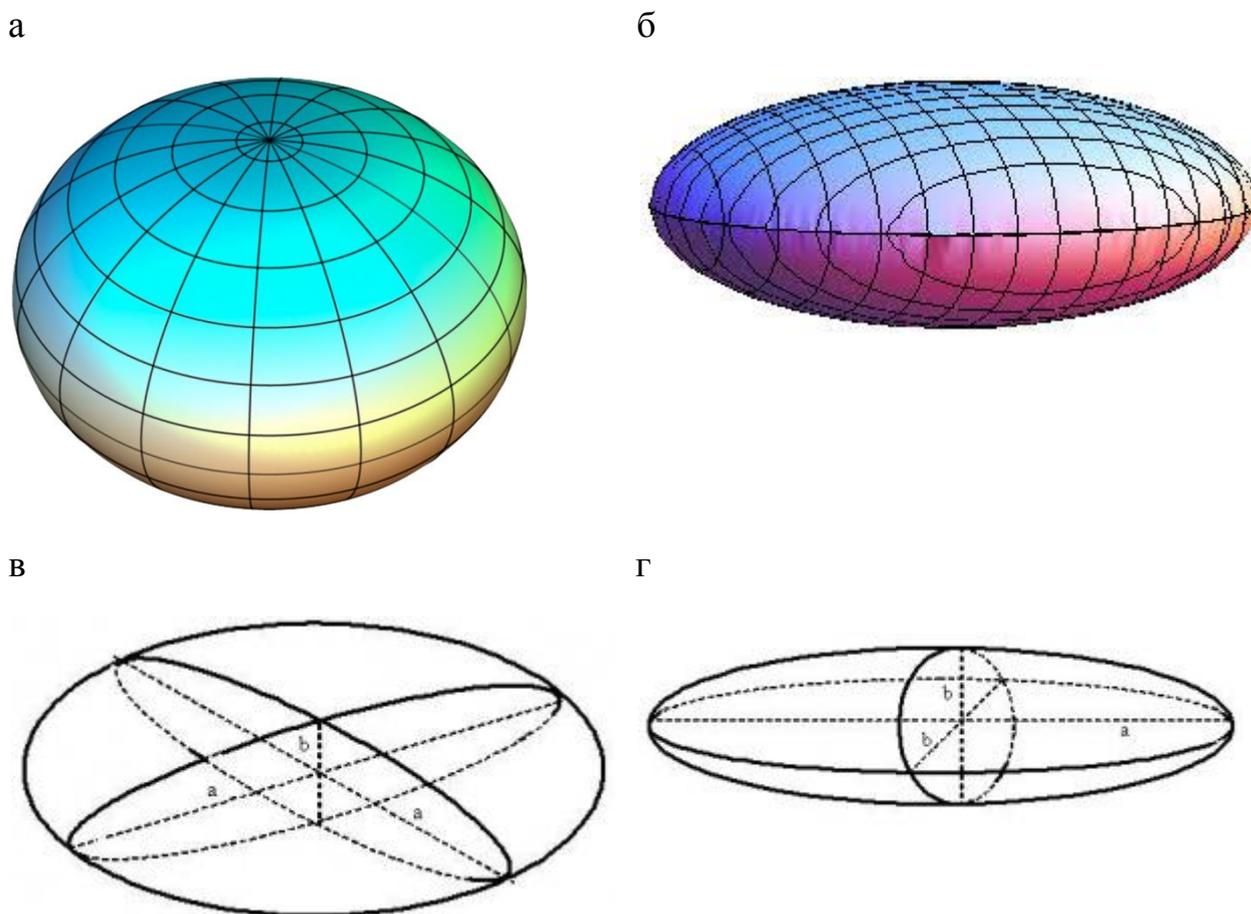


Рисунок 45. Две формы сфероида - сплюснутый и вытянутый

Введем понятие эксцентриситета сфероидальной наночастицы, количественно выражающего степень ее вытянутости (сплюснутости). Эксцентриситет наночастиц определяется выражением:

$$e^2 = 1 - \frac{b_{el}^2}{a_{el}^2}. \quad (38)$$

Будем рассматривать эволюцию оптических спектров наночастиц с одинаковым объемом в зависимости от их эксцентриситета. Для удобства получим выражения для факторов деполяризации вдоль каждой из осей для обоих типов сфероидальных наночастиц. С учетом выражений (36) – (38) получим:

$$L_{a,obl} \approx \frac{1}{2 + \frac{1}{\sqrt{1-e^2}}}, \quad (39)$$

$$L_{b,obl} \approx \frac{1}{2\sqrt{1-e^2} + 1}, \quad (40)$$

$$L_{a,pr} \approx \frac{1}{1 + \frac{2}{\sqrt{1-e^2}}}, \quad (41)$$

$$L_{b,pr} \approx \frac{1}{\sqrt{1-e^2} + 2}. \quad (42)$$

Факторы деполяризации с индексом *obl* соответствуют сплюснутым наночастицам; факторы деполяризации с индексом *pr* соответствуют вытянутым наночастицам.

Введем обозначения для объёма:

$$V_{obl} = \frac{4\pi}{3} a^2 b, \quad (43)$$

$$V_{pr} = \frac{4\pi}{3} a b^2. \quad (44)$$

С учетом (39) – (44) получим выражения для поляризуемости вдоль большей и меньшей осей двух типов сфероидных наночастиц:

$$\alpha_{a,obl} = \frac{V_{obl}}{4\pi} \frac{\frac{\epsilon_m}{\epsilon_D} - 1}{(1 + (\frac{\epsilon_m}{\epsilon_D} - 1)L_{a,obl})}, \quad (45)$$

$$\alpha_{b,obl} = \frac{V_{obl}}{4\pi} \frac{\frac{\varepsilon_m}{\varepsilon_D} - 1}{(1 + (\frac{\varepsilon_m}{\varepsilon_D} - 1)L_{b,obl})}, \quad (46)$$

$$\alpha_{a,pr} = \frac{V_{pr}}{4\pi} \frac{\frac{\varepsilon_m}{\varepsilon_D} - 1}{(1 + (\frac{\varepsilon_m}{\varepsilon_D} - 1)L_{a,pr})}, \quad (47)$$

$$\alpha_{b,pr} = \frac{V_{pr}}{4\pi} \frac{\frac{\varepsilon_m}{\varepsilon_D} - 1}{(1 + (\frac{\varepsilon_m}{\varepsilon_D} - 1)L_{b,pr})}. \quad (48)$$

Рассмотрим задачу, когда неполяризованный свет падает на ансамбль сфероидальных наночастиц, в котором наблюдается равновероятное распределение частиц по ориентациям. В таком случае средневзвешенная поляризуемость для ансамбля сплюснутых (α_{obl}) и вытянутых (α_{pr}) наночастиц можно определить как:

$$\alpha_{obl} = \frac{2\alpha_{a,obl} + \alpha_{b,obl}}{3}, \quad (49)$$

$$\alpha_{pr} = \frac{\alpha_{a,obl} + 2\alpha_{b,obl}}{3}. \quad (50)$$

Спектры сечения экстинкции будем также рассчитывать исходя из соотношений (29), (45) – (50). Сравним спектр сечения экстинкции шарообразной, а также средневзвешенные сечения экстинкции сплюснутых ($e=0.8$) и вытянутых ($e=0.8$) частиц с равными объемами 60 нм^3 (рисунок 46). Параметры материала наночастиц $\varepsilon_{inf}=1$, $\omega_{pl}=8 \cdot 10^{15} \text{ с}^{-1}$, $\gamma=1 \cdot 10^{15} \text{ с}^{-1}$. Пример расчета спектров сечения экстинкции неупорядоченных ансамблей сфероидных наночастиц приведен в приложении 14.

Из рисунка 46 видно, что в спектрах неупорядоченного ансамбля сфероидных наночастиц наблюдается два максимума с разной интенсивностью. В случае сплюснутых наночастиц длинноволновый максимум, обусловленный резонансным возбуждением плазмонных колебаний вдоль длинных осей, обладает большей интенсивностью по сравнению с коротковолновым, обусловленным резонансным возбуждением плазмонных колебаний вдоль короткой оси. Это связано с тем, что в таких наночастицах две равные оси больше третьей оси. Поэтому те ориентации частиц, при которых резонансно возбуждаются плазмонные колебания вдоль длинных осей, в неупорядоченном ансамбле встречаются в два раза чаще тех

ориентаций, при которых резонансно возбуждаются колебания вдоль короткой оси. В случае вытянутых наночастиц наблюдается обратное соотношение интенсивностей плазмонных резонансов. На рисунке 47 показана эволюция спектров наночастиц при изменении их эксцентриситета (объем и материальные свойства при этом сохраняются). Для примера взяты ансамбли вытянутых наночастиц с теми же материальными параметрами.

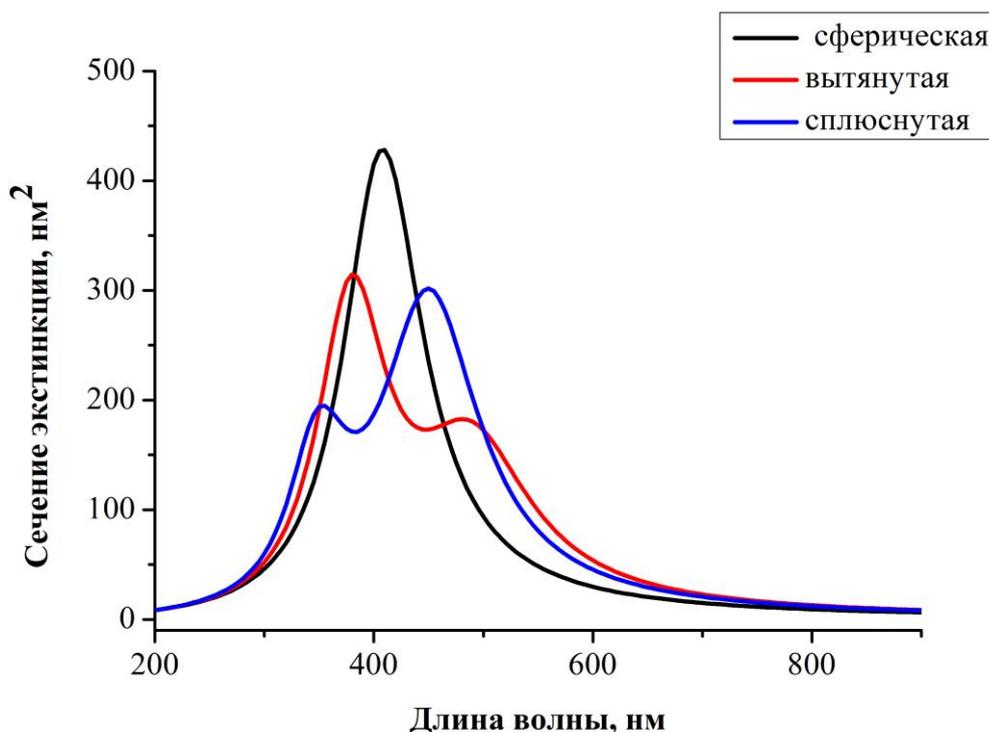


Рисунок 46. Спектр сечения экстинкции шарообразной, и средневзвешенные спектры сечения экстинкции ансамблей сплюснутых ($e=0.8$) и вытянутых ($e=0.8$) сфероидальных частиц с равными объемами 60 nm^3 . Параметры материала наночастиц $\epsilon_{inf}=1$, $\omega_{pl}=8 \cdot 10^{15} \text{ c}^{-1}$, $\gamma=1 \cdot 10^{15} \text{ c}^{-1}$. Частицы находятся в пустоте.

С ростом эксцентриситета (в данном случае вытянутости наночастиц) длинноволновый пик испытывает красное смещение, коротковолновый - синее. В случае, когда у вытянутой наночастицы $e \approx 1$ можно считать, что частица близка по форме к длинной цилиндрической нанонити. При $e=0$ имеем случай шарообразной частицы. В случае малых значений эксцентриситета расщепление маскируется собственной шириной плазмонных полос. На рисунке 48 сравниваются средневзвешенные спектры вытянутых сфероидальных наночастиц с эксцентриситетом 0.5 и различными параметрами γ . Объем наночастиц 60 nm^3 , $\epsilon_{inf}=1$, $\omega_{pl}=8 \cdot 10^{15} \text{ c}^{-1}$, наночастицы находятся в вакууме. Для удобства сравнения все спектры нормированы на максимум.

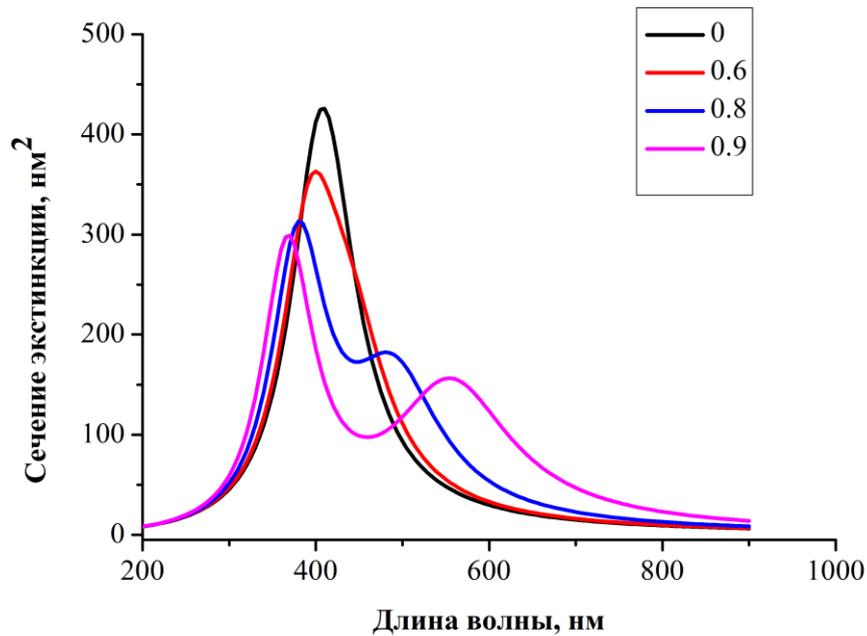


Рисунок 47. Средневзвешенные спектры сечений экстинкции ансамблей вытянутых сфероидных наночастиц с фиксированными эксцентриситетами, указанными на рисунке. Параметры материала наночастицы $\epsilon_{inf}=1$, $\omega_{pl}=8 \cdot 10^{15} \text{ c}^{-1}$, $\gamma=1 \cdot 10^{15} \text{ c}^{-1}$. Объем наночастиц 60 nm^3 . Наночастицы находятся в вакууме

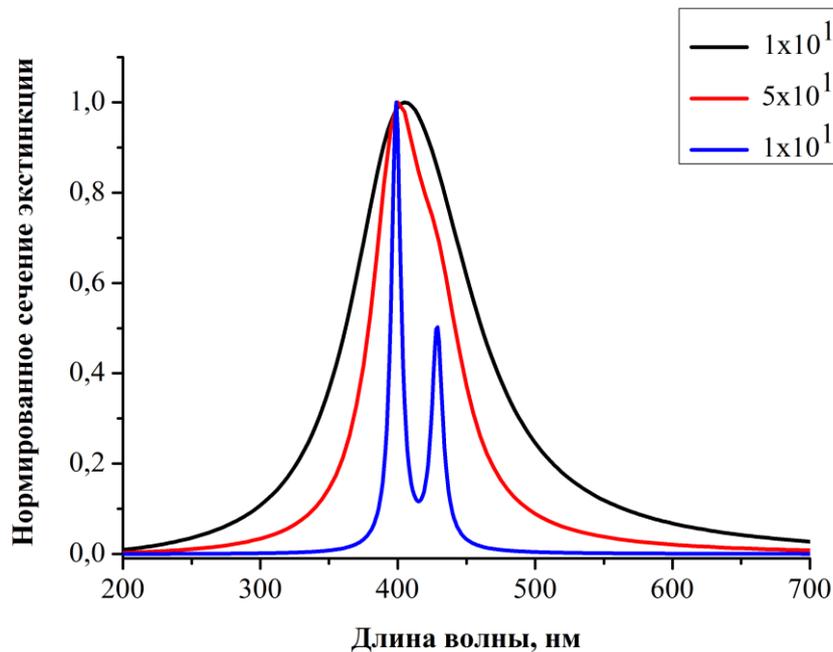


Рисунок 48. Нормированные спектры сечений экстинкции наночастиц с эксцентриситетом 0.5 и различными параметрами γ ($1 \cdot 10^{14} - 1 \cdot 10^{15} \text{ c}^{-1}$), $\epsilon_{inf}=1$, $\omega_{pl}=8 \cdot 10^{15} \text{ c}^{-1}$, наночастицы находятся в вакууме

Замечания

1. С помощью модели эллипсоидальных наночастиц можно также приближенно описать тонкую круглую пластинку и длинный цилиндр.

2. Выражения (39) – (42) можно привести к случаю сферической частицы, если $L_a=L_b=L_c=1/3$

3. Для описания наночастиц более сложных форм, а также наночастиц, диэлектрическое окружение которых неоднородно, необходимо использование численных методов моделирования

4. Для модели плазмонного резонанса эллиптических наночастиц, описанных в данном пункте, также необходимо учитывать ограничения, связанные с размером наночастиц. Увеличение размеров приведет к необходимости учета неоднородности поля.

5. В данном разделе рассматривался частный случай разупорядоченного ансамбля наносфероидов, направления ориентаций длинных осей которых равновероятны. Для расчета спектра упорядоченных ансамблей необходимо учитывать распределение сфероидов по ориентациям и поляризацию света.

1.9 СОБСТВЕННЫЕ КОЛЕБАНИЯ ПЛАЗМОННОГО ТИПА В СИСТЕМЕ ИЗ ДВУХ ЧАСТИЦ

Ранее в практикуме рассматривались резонансные моды в изолированных наночастицах. Если наночастицы находятся на близком расстоянии друг от друга, их резонансные свойства изменяются. Простейшим вариантом такого взаимного влияния является взаимодействие двух наночастиц. В случае если расстояние между наночастицами заметно больше их радиуса, взаимодействие можно учесть как небольшую поправку к свойствам изолированных частиц.

Рассмотрим простейший пример – пара взаимодействующих сферических наночастиц. Пусть частицы с радиусом a_1 и a_2 и диэлектрическими проницаемостями ε_1 и ε_2 находятся на расстоянии ρ друг от друга (рисунок 49).

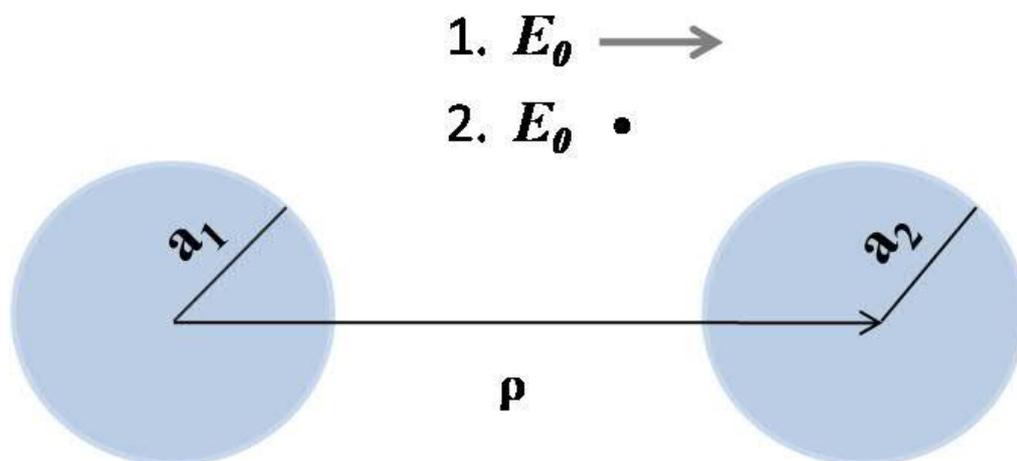


Рисунок 49. Взаимное расположение двух наночастиц во внешнем однородном поле

При помещении частиц во внешнее поле в каждой из них ней возникает дипольный момент. Когда наночастицы находятся на близком расстоянии друг от друга, каждая из них начинает испытывать влияние поля диполя другой наночастицы. Будем считать, что расстояние между частицами все же не слишком мало, так что изменением поля диполя одной частицы в пределах второй частицы можно пренебречь. Тогда при условии, что и внешнее поле однородно, все поля, действующие на частицы, можно считать однородными. Это соответствует случаю, когда размер всей системы меньше длины волны падающего излучения. Тогда дипольные моменты для каждой из наночастиц могут быть записаны как

$$\vec{p}_1 = \alpha_1(\vec{E}_0 + \vec{E}_{d2}), \quad (51)$$

$$\vec{p}_2 = \alpha_2(\vec{E}_0 + \vec{E}_{d1}). \quad (52)$$

Как уже было отмечено, расчет производится при условии, что радиусы наночастиц (a_1, a_2) малы по сравнению с расстоянием между ними (ρ), что позволяет считать поля, действующие на частицы, однородными. Тогда вектор напряженности поля диполя каждой из наночастиц, наведенный в центре другой наночастицы можно записать как

$$\vec{E}_{d1} = \frac{3(\vec{p}_2 \cdot \vec{\rho}) \cdot \vec{\rho}}{\rho^5} - \frac{\vec{p}_2}{\rho^3}, \quad (53)$$

$$\vec{E}_{d2} = \frac{3(\vec{p}_1 \cdot \vec{\rho}) \cdot \vec{\rho}}{\rho^5} - \frac{\vec{p}_1}{\rho^3}. \quad (54)$$

Таким образом, получаем полную систему:

$$\vec{p}_1 = \alpha_1 \left(\vec{E}_0 + \frac{3(\vec{p}_2 \cdot \vec{\rho}) \cdot \vec{\rho}}{\rho^5} - \frac{\vec{p}_2}{\rho^3} \right), \quad (55)$$

$$\vec{p}_2 = \alpha_2 \left(\vec{E}_0 + \frac{3(\vec{p}_1 \cdot \vec{\rho}) \cdot \vec{\rho}}{\rho^5} - \frac{\vec{p}_1}{\rho^3} \right).$$

Существуют два подхода для решения данной системы. При одном из подходов система решается с учетом внешнего поля. Для этого можно подставить выражение для дипольного момента второй наночастицы в первое уравнение и решить его относительно дипольного момента первой наночастицы. Полученное выражение подставляется в уравнение для дипольного момента второй наночастицы. Таким образом, могут быть найдены искомые дипольные моменты и проведен анализ условий возбуждения собственных резонансных мод в системе, состоящей из пары наночастиц.

Второй подход основан на поиске решения, которое может существовать и в отсутствие внешнего поля. Зная выражения для поляризуемостей и дисперсию диэлектрической проницаемости, мы сможем рассчитать, при каких частотах (длинах волн) внешнего поля данные резонансные условия могут быть реализованы. Рассмотрим второй подход решения. Положим $\vec{E}_0 = 0$. Получаем упрощенные выражения:

$$\vec{p}_1 = \alpha_1 \left(\frac{3(\vec{p}_2 \cdot \vec{\rho}) \cdot \vec{\rho}}{\rho^5} - \frac{\vec{p}_2}{\rho^3} \right), \quad (56)$$

$$\vec{p}_2 = \alpha_2 \left(\frac{3(\vec{p}_1 \cdot \vec{\rho}) \cdot \vec{\rho}}{\rho^5} - \frac{\vec{p}_1}{\rho^3} \right).$$

Рассмотрим два случая – дипольные моменты параллельны и перпендикулярны ρ . Решим сначала для случая, когда дипольные моменты параллельны ρ . Из (56) получим соотношения

$$p_{1||} = \alpha_{1||} \frac{2p_{2||}}{\rho^3}, \quad (57)$$

$$p_{2||} = \alpha_{2||} \frac{2p_{1||}}{\rho^3}.$$

Анализируя систему (57), можно показать, что ненулевое решение данной системы может быть достигнуто при условии

$$\frac{4\alpha_{1||}\alpha_{2||}}{\rho^6} = 1. \quad (58)$$

Рассмотрим более простой случай, когда наночастицы имеют одинаковый размер и сделаны из одного материала. Тогда их поляризуемости равны $\alpha_{||}$, и можно записать

$$\frac{4\alpha_{||}^2}{\rho^6} = 1. \quad (59)$$

Из уравнения (59) можно получить два решения:

$$\alpha_{||} = \pm \frac{\rho^3}{2}. \quad (60)$$

Подставляя эти решения в (57), можно показать, что при $\alpha_{||} = \frac{\rho^3}{2}$ дипольные моменты обеих частиц равны. При подстановке $\alpha_{||} = -\frac{\rho^3}{2}$ оказывается, что $p_{1||} = -p_{2||}$. Фактически мы получили два решения, при одном из которых оба диполя сонаправлены и система обладает ненулевым

суммарным дипольным моментом. Назовем это решение дипольно-активным. Второе решение будет соответствовать случаю, когда дипольные моменты наночастиц противонаправлены, а суммарный дипольный момент системы равен 0. Такое состояние будет называться квадрупольным.

Зная выражение для поляризуемости наночастиц (31), получим резонансные величины диэлектрической проницаемости для случая дипольно-активной ($\varepsilon_{\parallel d}$) и квадрупольной ($\varepsilon_{\parallel q}$) моды:

$$\varepsilon_{\parallel d} = \frac{2\varepsilon_D(a^3 + \rho^3)}{2a^3 - \rho^3}, \quad (61)$$

$$\varepsilon_{\parallel q} = \frac{2\varepsilon_D(a^3 - \rho^3)}{2a^3 + \rho^3}. \quad (62)$$

Аналогичные вычисления можно провести и для случая, когда дипольные моменты направлены перпендикулярно ρ , тогда

$$p_{1\perp} = \alpha_{1\perp} \frac{-p_{2\perp}}{\rho^3}, \quad (63)$$

$$p_{2\perp} = \alpha_{2\perp} \frac{-p_{1\perp}}{\rho^3}.$$

Для случая одинаковых частиц получаем условие

$$\alpha_{\perp} = \pm\rho^3. \quad (64)$$

В этом случае дипольно-активные колебания (дипольные моменты наночастиц сонаправлены) достигаются при $\alpha_{\perp d} = -\rho^3$. Квадрупольное состояние, при котором (дипольные моменты противонаправлены), достигается при $\alpha_{\perp q} = -\rho^3$. При этом резонансные диэлектрические проницаемости выражаются как

$$\varepsilon_{\perp d} = \frac{\varepsilon_D(a^3 - 2\rho^3)}{a^3 + \rho^3}, \quad (65)$$

$$\varepsilon_{\perp q} = \frac{\varepsilon_D(a^3 + 2\rho^3)}{a^3 - \rho^3}. \quad (66)$$

На рисунке 50 построены зависимости резонансных диэлектрических проницаемостей от расстояния между взаимодействующими наночастицами. Для расчетов было допущено, что частицы сделаны из одинакового материала, имеют одинаковый радиус (10 нм), система находится в вакууме. Пример расчета приведен в приложении 15. Из рисунка видно, что если

наночастицы находятся на большом расстоянии, то решение сводится к случаю изолированных наночастиц. В этом случае все резонансные моды вырождены, расщепления не наблюдается. Сближение наночастиц приводит к увеличению вклада поправки, связанной с полем диполя, и снятию вырождения резонансных мод.

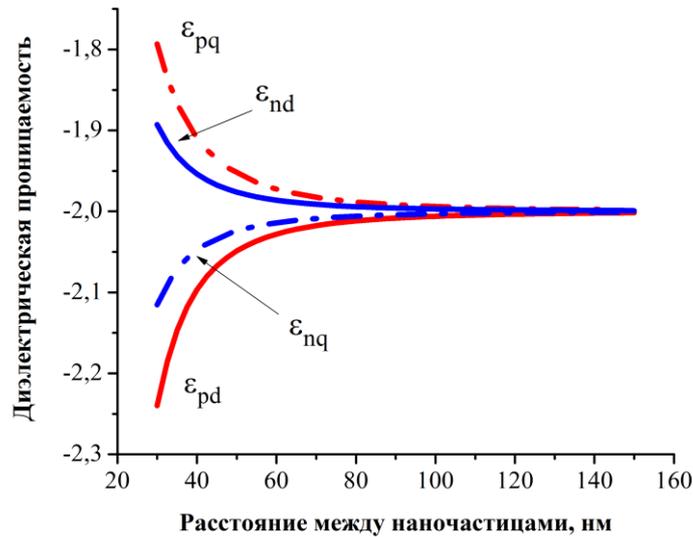


Рисунок 50 Расщепление резонансных диэлектрических проницаемостей пары сферических наночастиц одного размера, сделанных из одного материала и помещенных в вакуум. В подписях индекс р соответствует случаю, когда дипольные моменты параллельны, n – перпендикулярны оси, соединяющей две частицы. Индекс d соответствует дипольно-активной моде, q – квадрупольной моде

Зная величины резонансных диэлектрических проницаемостей, можно рассчитать частоты и длины волн внешнего поля, при которых будут достигаться резонансные условия. Пусть дисперсия диэлектрической проницаемости материала задается согласно Друде-модели (1). Можно показать, что для дипольно-активной моды в случае дипольных моментов параллельных ρ

$$\omega_{||d} = \sqrt{\frac{\omega_{pl}^2}{\epsilon_{inf} - \epsilon_{||d}} - \gamma^2}, \quad (67)$$

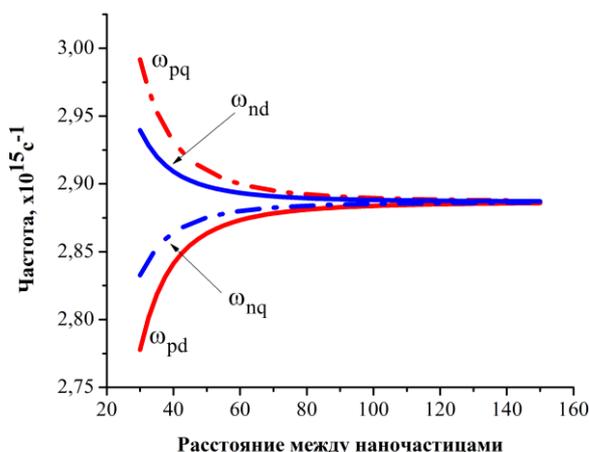
$$\lambda_{||d} = \frac{2\pi c}{\omega_{||d}}.$$

В (67) зависимость частоты и длины волны от расстояния между наночастицами присутствует в неявном виде. Величина ρ определяет

резонансную диэлектрическую проницаемость, входящую в знаменатель выражения для частоты.

Аналогичные выражения записываются и для остальных мод. Необходимо отметить, что случай, когда дипольные моменты параллельны вектору ρ , соответствует ситуации, когда вектор напряженности падающей электромагнитной волны совершает колебания вдоль оси, соединяющей центры наночастиц. Случай, когда дипольные моменты перпендикулярны вектору ρ , соответствует ситуации, когда вектор напряженности падающей электромагнитной волны совершает колебания перпендикулярно оси, соединяющей центры наночастиц. На рисунке 51 приведены зависимости резонансных частот и длин волн от расстояния между центрами наночастиц. Пример расчета зависимостей резонансных частот и длин волн представлен в приложении 16. Из рисунков видно, что дипольно-активная мода в случае, когда вектор напряженности падающего излучения поляризован вдоль линии, соединяющий центр наночастиц, смещается в область низких частот (больших длин волн). В случае, когда вектор напряженности падающего излучения поляризован поперек линии соединяющий центр наночастиц, дипольно-активная мода смещается в область высоких частот (меньших длин волн).

а



б

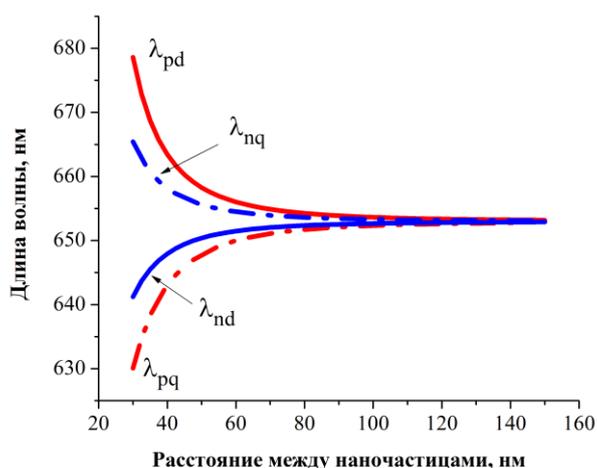


Рисунок 51 Расщепление резонансных частот (а) и длин волн (б) в системе из двух сферических наночастиц с радиусом 10 нм, сделанных из одного материала с параметрами $\epsilon_{inf}=1$, $\omega_{pl}=5 \cdot 10^{15} \text{ c}^{-1}$, $\gamma=2 \cdot 10^{15} \text{ c}^{-1}$. Наночастицы находятся в вакууме. В подписях индекс р соответствует случаю, когда дипольные моменты параллельны ρ , n – перпендикулярны. Индекс d соответствует дипольно-активной моде, q – квадрупольной моде

1.10 СПЕКТРЫ СЕЧЕНИЯ ЭКСТИНКЦИИ ВЗАИМОДЕЙСТВУЮЩИХ НАНОЧАСТИЦ

В предыдущем разделе мы рассмотрели, как изменяются условия для возбуждения плазмонных резонансов в системе, состоящей из двух наночастиц. Перейдем к расчету спектров сечения экстинкции данной системы. Для расчета условий возбуждения мы использовали допущение, что внешнее поле однородно. Данное допущение может быть использовано только в случае, когда размеры всей системы меньше по сравнению с длиной волны падающего излучения. В таком случае для построения спектров сечения экстинкции системы, состоящих из двух частиц, будем использовать квазистатическую модель. Для этого нам необходимо выразить суммарный дипольный момент двух взаимодействующих частиц. Для простоты будем рассматривать случай двух одинаковых наночастиц.

Ранее мы показали, что в случае квадрупольных мод дипольные моменты наночастиц равны по модулю, но противоположны по направлению. В этом случае суммарный дипольный момент системы равен 0. Это означает, что несмотря на то, что ранее мы показали возможность существования подобных резонансов, в рассматриваемой модели с использованием однородных полей они возбуждаться не будут. Из-за нулевого дипольного момента в системе из двух наночастиц поглощение света на частотах, соответствующих квадрупольным возбуждениям, не происходит. Поэтому далее будем рассматривать только дипольно-активные колебания.

Следует отметить, что в случае, когда требования малости всей системы по сравнению с длиной волны падающей волны нарушается, внешнее поле уже не может считаться однородным. В таком случае квадрупольные моды будут проявляться в спектрах сечения экстинкции. Однако для подобных расчетов требуются более сложные математические модели, и данный случай не рассматривается в настоящем практикуме.

Выразим полный дипольный момент системы p_t , когда вектор напряженности электрического поля поляризован вдоль оси, соединяющей наночастицы.

$$p_{t||} = p_{1||} + p_{2||}. \quad (68)$$

С учетом равенства дипольных моментов в рассматриваемом случае и с учетом соотношений (51), (52), (57)

$$p_{t\parallel} = 2p_{1\parallel} = 2\alpha (E_0 + E_{d2}) = 2\alpha \left(E_0 + \frac{2p_2}{\rho^3} \right) = 2\alpha \left(E_0 + \frac{p_{t\parallel}}{\rho^3} \right). \quad (69)$$

Выразив суммарный дипольный момент, получим

$$p_{t\parallel} = \frac{2\alpha}{1 - \frac{2\alpha}{\rho^3}} E_0. \quad (70)$$

Запишем поляризацию всей системы как $\alpha_{t\parallel}$

$$\alpha_{t\parallel} = \frac{2\alpha}{1 - \frac{2\alpha}{\rho^3}} \quad (71)$$

где α задается выражением (31)

Аналогичным образом получается поляризуемость системы, когда вектор напряженности падающего электромагнитного поля перпендикулярен оси, соединяющей наночастицы,

$$\alpha_{t\perp} = \frac{2\alpha}{1 + \frac{\alpha}{\rho^3}} \quad (72)$$

Анализируя полученные значения для полной поляризуемости системы, можно увидеть, что они содержат ранее полученные нами условия резонансного возбуждения дипольно-активных колебаний.

Для расчета спектров сечения экстинкции будем использовать соотношения (29), (71), (72). Рассмотрим случай двух одинаковых наночастиц с радиусом 10 нм, сделанных из одного материала с параметрами $\varepsilon_{inf}=1$, $\omega_{pl}=5 \cdot 10^{15} \text{ с}^{-1}$, $\gamma=2 \cdot 10^{15} \text{ с}^{-1}$. Наночастицы находятся в вакууме. Результаты расчетов представлены на рисунке 52. Из рисунка видно, что полосы соответствующие дипольно-активным модам для случая, когда напряженность параллельна и перпендикулярна оси, соединяющей наночастицы смещаются в зависимости от расстояния между наночастицами. Пример расчета спектров представлен в приложении 17.

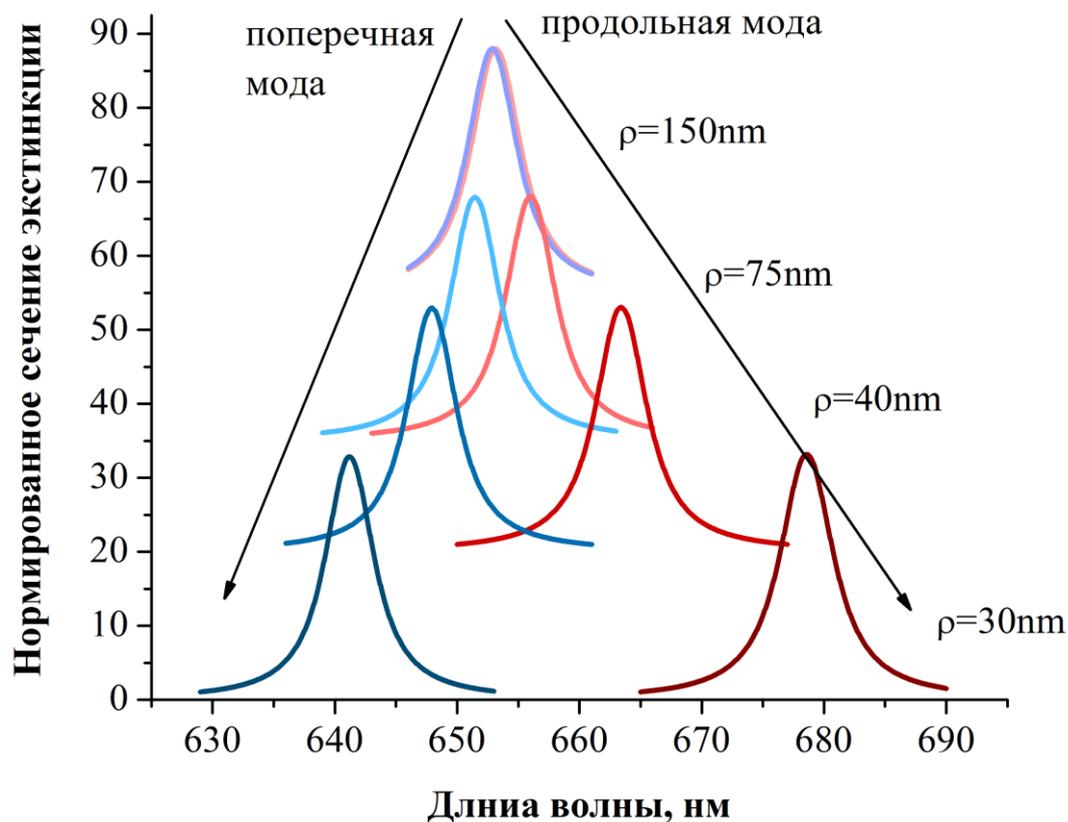


Рисунок 52. Спектры экстинкции системы из двух одинаковых взаимодействующих плазмонных наночастиц, сделанных из материала с параметрами $\varepsilon_{inf}=1$, $\omega_{pl}=5 \cdot 10^{15} \text{ с}^{-1}$, $\gamma=2 \cdot 10^{15} \text{ с}^{-1}$. Наночастицы находятся в вакууме. Радиус наночастицы 10 нм.

Данную модель также можно использовать и для случая реальных металлов. Рассмотрим случай двух серебряных наночастиц с радиусом 10 нм. Для построения спектральных зависимостей будем использовать данные оптических констант, полученные с малым шагом (высоким спектральным разрешением). Для данного вычисления использовались данные из [1]. Будем считать, что наночастицы находятся в вакууме. По аналогии со случаем, рассмотренным выше, допустим, что падающее поле однородно и квадрупольные моды в этом случае не могут быть возбуждены. Спектры сечения экстинкции представлены на рисунке 53. Пример расчета спектров экстинкции системы, состоящей из двух наночастиц для случая реальных металлов, приведен в приложении 18. Из рисунка видно, что, в отличие от Друде материала, резонансные полосы получают разные по интенсивности и ширине, что объясняется вкладом межзонных электронных переходов в диэлектрические свойства материалов.

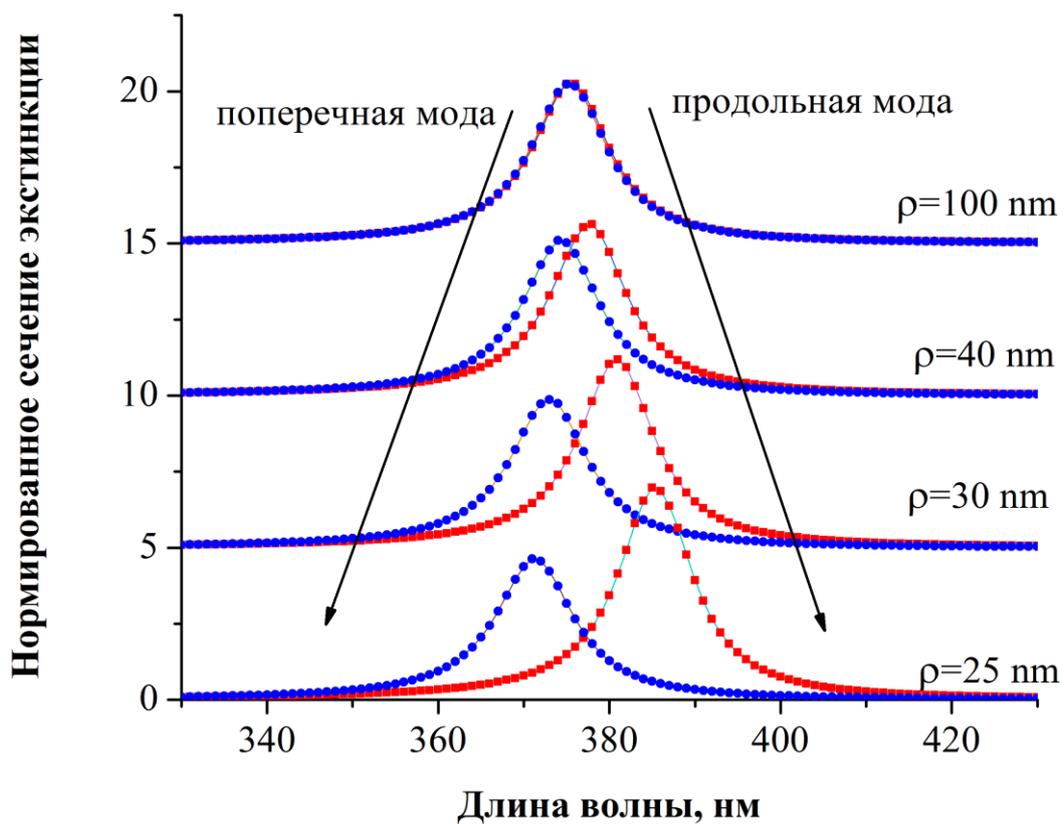


Рисунок 53. Спектры экстинкции системы из двух серебряных наночастиц. Наночастицы находятся в вакууме. Радиус наночастицы 10 нм.

1.11 УШИРЕНИЕ ПОЛОСЫ ПЛАЗМОННОГО РЕЗОНАНСА. УЛУЧШЕННАЯ КВАЗИСТАТИЧЕСКАЯ МОДЕЛЬ

Ранее мы рассматривали оптические свойства наночастиц в квазистатическом приближении, когда размеры частиц существенно меньше длины волны падающего света. Мы показали, что квазистатическое приближение позволяет нам считать, что наночастица находится в однородном поле. Однако из квазистатического приближения следует, что положение максимума и ширина полосы резонанса не зависит от размера частиц. В то же время в рамках теории Ми было продемонстрировано, что увеличение размера частиц приводит к уширению полосы и ее красному смещению. Основной причиной наблюдаемых изменений в спектре является радиационное уширение. Для малых металлических частиц оно относительно мало, но по мере роста размеров частицы начинает играть все большую роль.

Излучение электромагнитных волн колеблющимся диполем при возбуждении локализованного в наночастице плазмона сопровождается уменьшением энергии колебаний на величину энергии, уносимой излученными волнами, как это схематически показано на рис. 54.

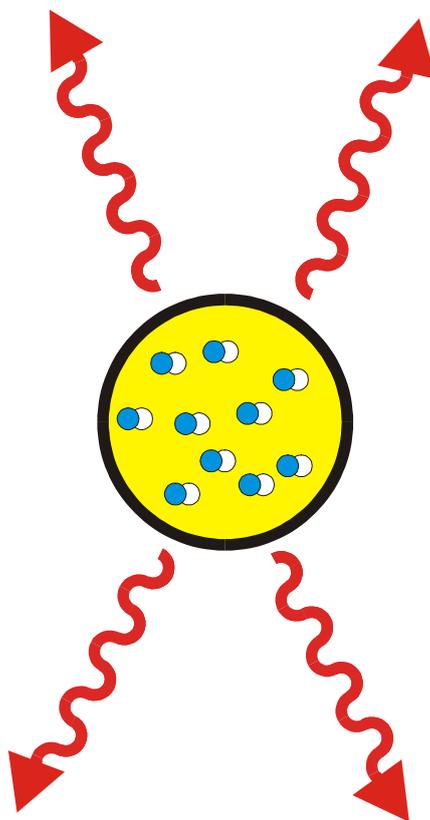


Рисунок 54. Коллективное движение электронов в металлической наночастице создает осциллирующий дипольный момент, который излучает электромагнитные волны.

Количественно действие излучения на диполь и деполяризацию, связанную с неоднородностью поля, можно учесть, введя дополнительное электрическое поле (E_{dep})

$$\vec{E}_{dep} = \left(-\frac{4\pi}{3} + k^2 \frac{4\pi}{3} a^2 + i \frac{2}{3} k^3 \frac{4\pi}{3} a^3 \right) \vec{P}, \quad (73)$$

где k - модуль волнового вектора, \vec{P} - вектор поляризации (не путать с дипольным моментом \vec{p})

Складывая это дополнительное поле с внешним полем, получим эффективное поле, действующее на диполь. Тогда уравнение для поляризации примет вид

$$\vec{P} = \alpha(\vec{E}_0 + \vec{E}_{dep}). \quad (74)$$

Используя (31), (74) и (75) получим выражение для поляризуемости сферической наночастицы (α') с учетом эффекта деполяризации и радиационных потерь:

$$\alpha' = \frac{a^3(\varepsilon_m - \varepsilon_D)}{(\varepsilon_m + 2\varepsilon_D) - (\varepsilon_m - \varepsilon_D)q^2 - \frac{2}{3}i(\varepsilon_m - \varepsilon_D)q^3}, \quad (75)$$

где

$$q = ka = \frac{2\pi}{\lambda} \sqrt{\varepsilon_D} a = \frac{\omega}{c} \sqrt{\varepsilon_D} a. \quad (76)$$

Из соотношения (76) видно, что параметр q пропорционален a/λ , и при уменьшении размеров наночастиц данный параметр стремится к 0. Если $q=0$, выражение (75) переходит в (31), которое мы использовали ранее.

Проследим, как будут меняться спектры сечения экстинкции серебряной сферической частицы при увеличении ее размеров (рисунок 55). Для расчетов будем использовать выражения (29), (75) и (76). В приложении 19 представлен пример расчета спектров сечения экстинкции наночастиц с учетом эффекта деполяризации.

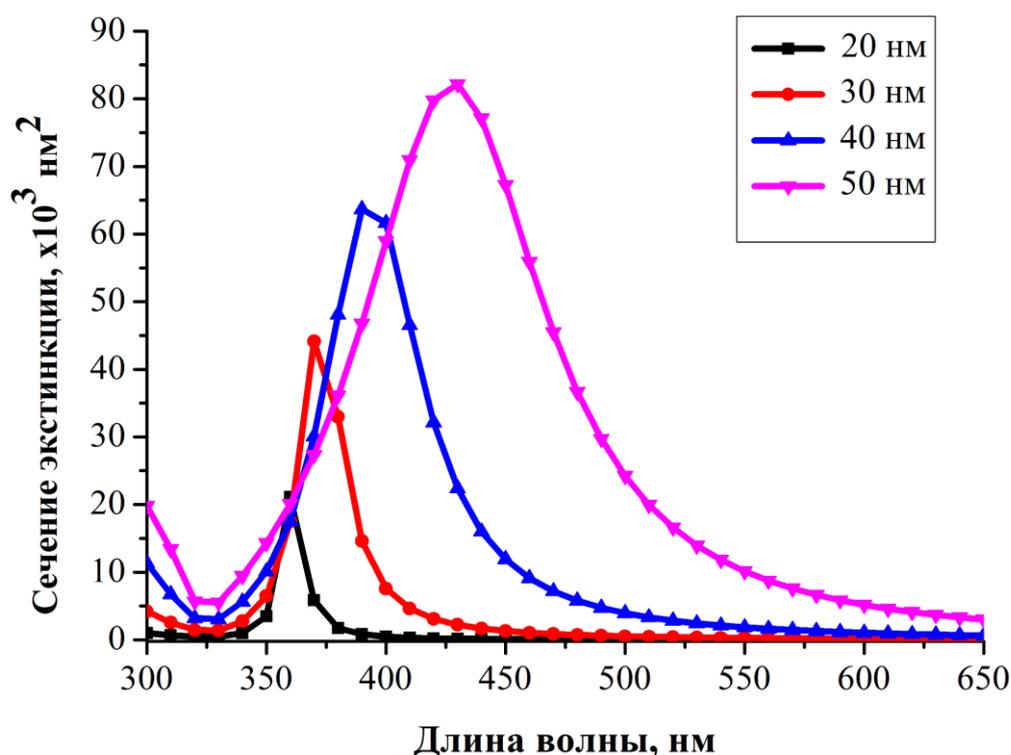


Рисунок 55. Спектры сечения экстинкции сферической серебряной наночастицы, рассчитанные в улучшенной квазистатической модели с учетом эффекта деполяризации. Радиусы частиц указаны на рисунке.

Из рисунка 55 видно, что учет поля деполяризации приводит к красному сдвигу и уширению полосы плазмонного резонанса с ростом размера наночастиц.

Необходимо отметить, что учет излучения диполя приводит к появлению дополнительного затухания плазмонных резонансов, локализованных в металлических наночастицах, которое принципиально не входит в оптические постоянные объемного материала.

Описанный подход обладает рядом преимуществ, таких как относительная простота расчетов и объяснение природы красного смещения и уширения полосы плазмонного резонанса. В то же время в данной модели не учитывается возбуждение квадрупольных мод и мод более высоких порядков.

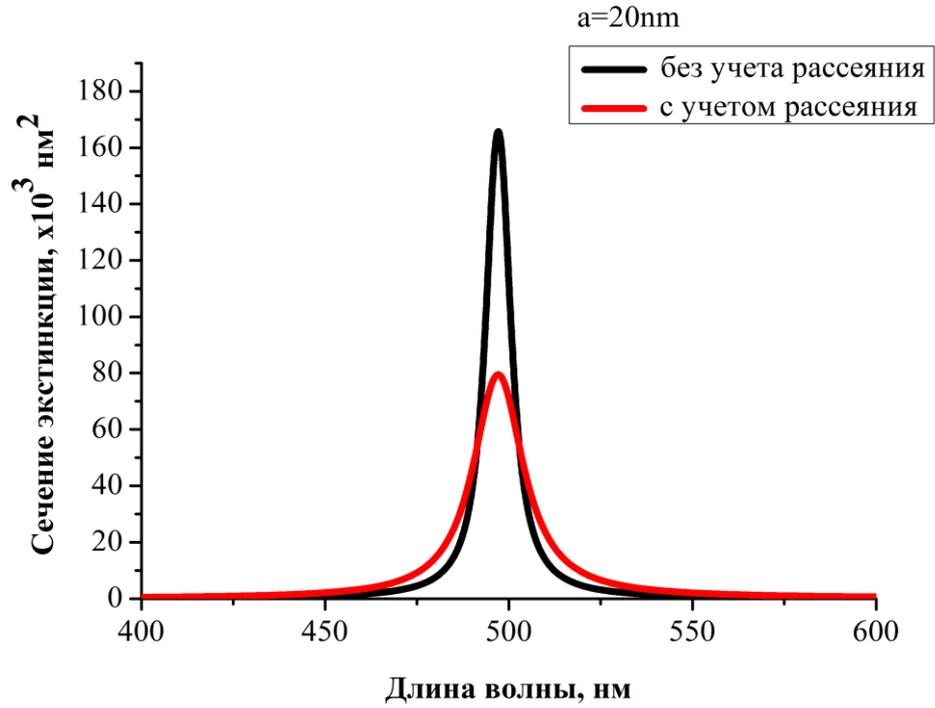
1.12 УШИРЕНИЕ ПОЛОСЫ ПЛАЗМОННОГО РЕЗОНАНСА. РАСSEЯНИЕ НА ПОВЕРХНОСТИ.

В предыдущем разделе мы описали длинноволновое смещение плазмонной полосы и ее уширение при увеличении размера наночастиц. Теперь перейдем к рассмотрению противоположного вопроса: что будет, если уменьшать размеры частиц. Ранее в разделе 2.2 мы показали, что уменьшение размера наночастицы приводит к модификации ее диэлектрических свойств из-за явления рассеяния электронов на поверхности наночастицы.

Проследим, как модификация диэлектрической проницаемости повлияет на сечение экстинкции наночастицы. Рассмотрим случай серебряных наночастиц. Рассчитаем положение резонанса наночастиц с радиусом 20 нм. Примем, что частицы находятся в некоторой диэлектрической матрице, с достаточно высоким показателем преломления, что позволит нам сместить резонанс в более длинноволновую область спектра, в которой вклад межзонных переходов мал и его можно не учитывать. Будем считать, что показатель преломления матрицы равен 2.2. Примером такой матрицы могут служить пленки аморфного гидрогенизированного углерода. В таком случае положение плазмонного резонанса приходится примерно на 500 нм. Для анализа влияния рассеяния электронов на поверхности наночастиц рассмотрим спектральный диапазон 400 – 600 нм и аппроксимируем его с помощью функции (5). Пример такой аппроксимации был ранее представлен на рисунке 28. Экспериментальные данные для диэлектрической проницаемости возьмем из [1]. Рассчитаем дисперсии диэлектрической проницаемости серебра с учетом рассеяния электронов на поверхности наночастицы с использованием соотношения (14). Ранее, на рисунке 30, были представлены дисперсии диэлектрической проницаемости с учетом рассеяния электронов на поверхности в зависимости от размера наночастицы.

Теперь рассчитаем спектры их сечения экстинкции с использованием соотношений (14), (29), (31). На рисунке 56 представлено сравнение расчетных спектров сечения экстинкции с учетом рассеяния электронов на поверхности и без учета. Рассматриваются наночастицы с радиусом 20 и 5 нм и параметрами $\epsilon_{inf}=2.4$, $\omega_{pl}=14.9 \cdot 10^{15} \text{ с}^{-1}$, $\gamma_0=5.5 \cdot 10^{13} \text{ с}^{-1}$, $A=1$, $v_F = 1,39 \cdot 10^6 \text{ м/с}$, находящиеся в диэлектрической матрице с показателем преломления $n=2,2$.

а



б

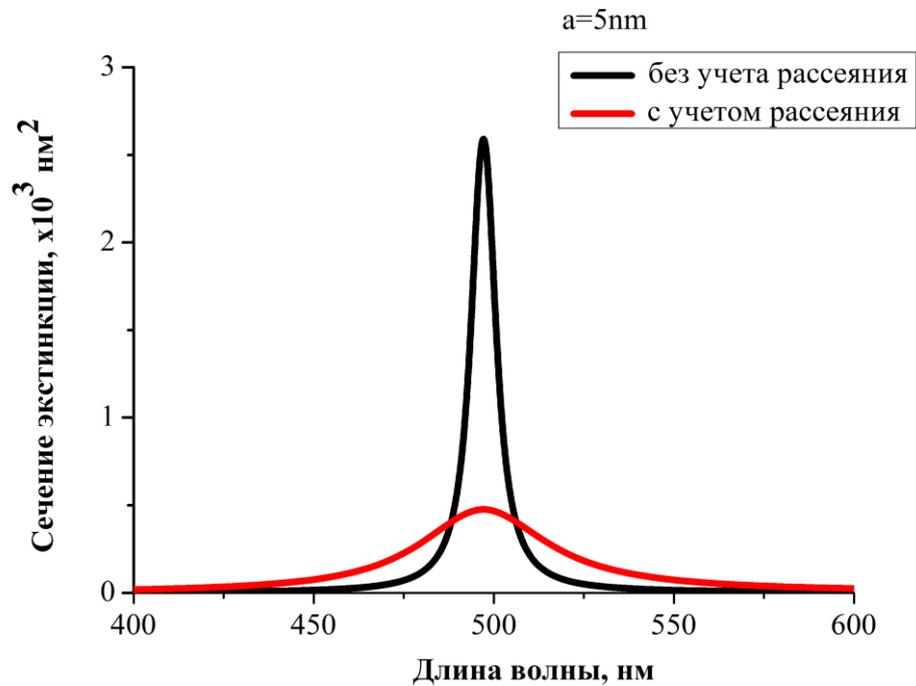


Рисунок 56. Сравнение расчетных спектров сечения экстинкции с учетом и без учета рассеяния электронов на поверхности. Рассматриваются наночастицы с радиусом 20 (а) и 5 (б) нм и параметрами $\epsilon_{inf}=2.4$, $\omega_{pl}=14.9 \cdot 10^{15} \text{ с}^{-1}$, $\gamma_0=5.5 \cdot 10^{13} \text{ с}^{-1}$, $A=1$, $v_F = 1.39 \cdot 10^6 \text{ м/с}$, находящиеся в диэлектрической матрице с $n=2.2$.

Из рисунка 56 видно, что учет рассеяния электронов на поверхности приводит к падению интенсивности полосы и ее уширению. Причем с уменьшением размера наночастиц модификация спектров становится более выраженной. Данные изменения объясняются ростом мнимой части диэлектрической проницаемости (рис. 14 б) при уменьшении размера наночастиц. В то же время положение максимума остается неизменным, так как действительная часть диэлектрической проницаемости меняется слабо. Пример расчета спектров сечения экстинкции наночастицы с учетом рассеяния электронов на ее поверхности приведен в приложении 20.

Необходимо отметить, что в последнее время были предприняты попытки измерять коэффициент A экспериментально. При этом оказалось, что его величина зависит от окружения наночастицы. Это означает, что при рассеянии электронов на свободной поверхности металла плазмонное возбуждение тушится не полностью, в то время как адсорбция посторонних молекул на поверхности наночастицы, как это показано на рис. 57, ведет к ускорению затухания плазмонных возбуждений. Такое дополнительное затухание плазмонных резонансов принято называть поверхностным химическим затуханием.

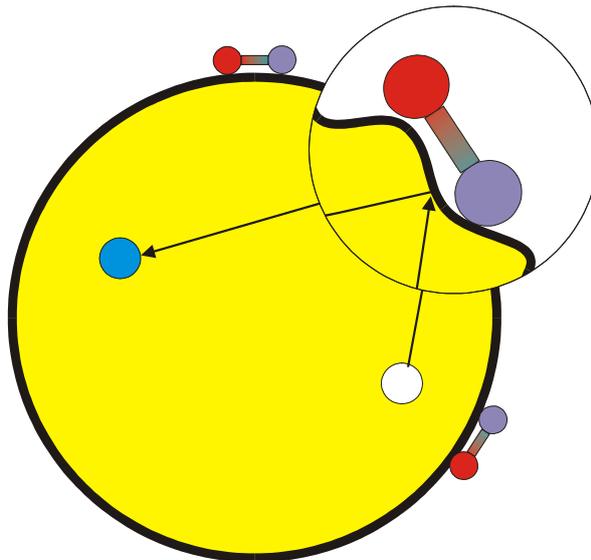


Рисунок 57. Рассеяние электронов на поверхности, покрытой посторонними молекулами, приводит к ускоренному затуханию коллективных электронных возбуждений.

1.13 НЕОДНОРОДНОЕ УШИРЕНИЕ

В предыдущих разделах мы рассмотрели ряд вопросов и показали, что ширина спектральной полосы определяется как фундаментальными объемными параметрами металлов, так и специфичными процессами, проходящими в наноструктурах.

Необходимо отметить, что в расчетах, приведенных в предыдущих разделах, рассматривались отдельные частицы. Однако экспериментальное исследование отдельных частиц является нетривиальной задачей. В стандартном эксперименте исследователи всегда имеют ансамбль наночастиц. Переход от отдельных наночастиц к их ансамблю приводит нас к еще одному фактору, определяющему ширину резонансной полосы - неоднородному уширению. Неоднородное уширение связано с разбросом наночастиц по формам и размерам. В таком случае регистрируемый спектр экстинкции ансамбля наночастиц является суммой спектров экстинкции всех фракций ансамбля. Схематично данное явление представлено на рисунке 58.

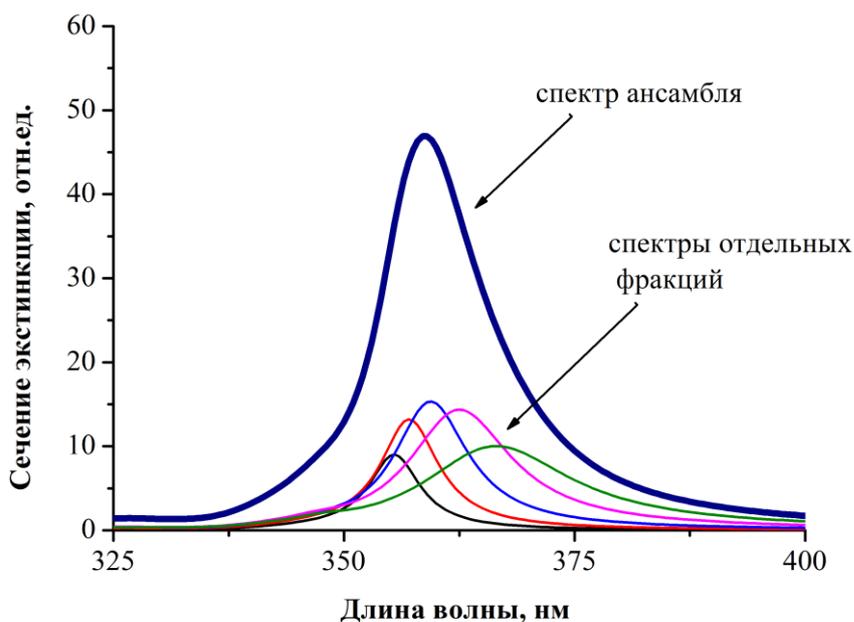


Рис. 58. Неоднородное уширение плазмонной полосы в ансамбле наночастиц

Ширина регистрируемого спектра в основном определяется функцией распределения наночастиц по размерам и формам. Как видно из рисунка 58, неоднородное уширение маскирует реальную ширину спектра отдельных фракций. Вследствие этого становится невозможным исследование времени жизни плазмонного возбуждения и влияния на него специфических процессов в наноструктурах путем анализа ширины полосы плазмонного резонанса измеренного напрямую из спектров поглощения ансамблей.

1.14 ОПРЕДЕЛЕНИЕ ВРЕМЕНИ ЖИЗНИ ЛОКАЛИЗОВАННОГО ПОВЕРХНОСТНОГО ПЛАЗМОНА В МЕТАЛЛИЧЕСКИХ НАНОЧАСТИЦАХ. МЕТОД ВЫЖИГАНИЯ ПОСТОЯННЫХ СПЕКТРАЛЬНЫХ ПРОВАЛОВ В НЕОДНОРОДНО УШИРЕННОЙ ПОЛОСЕ ПЛАЗМОННОГО ПОГЛОЩЕНИЯ

Неоднородный характер уширения плазмонных резонансов не позволяет измерять ширины, а следовательно, и скорости затухания индивидуальных плазмонных резонансов, локализованных в металлических наночастицах, непосредственно по их линейным спектрам экстинкции. Существует ряд нелинейно-оптических методов, позволяющих преодолеть это затруднение. Рассмотрим метод выжигания постоянных спектральных провалов в неоднородно уширенной полосе плазмонного резонанса островковых металлических пленок.

При действии на гранулированную металлическую пленку лазерных импульсов наночастицы нагреваются и могут претерпевать частичное испарение, а также изменение формы. На рис. 59 показаны спектры экстинкции серебряной гранулированной пленки до и после лазерного облучения с интенсивностью $8.4 - 25 \text{ мДж/см}^2$.

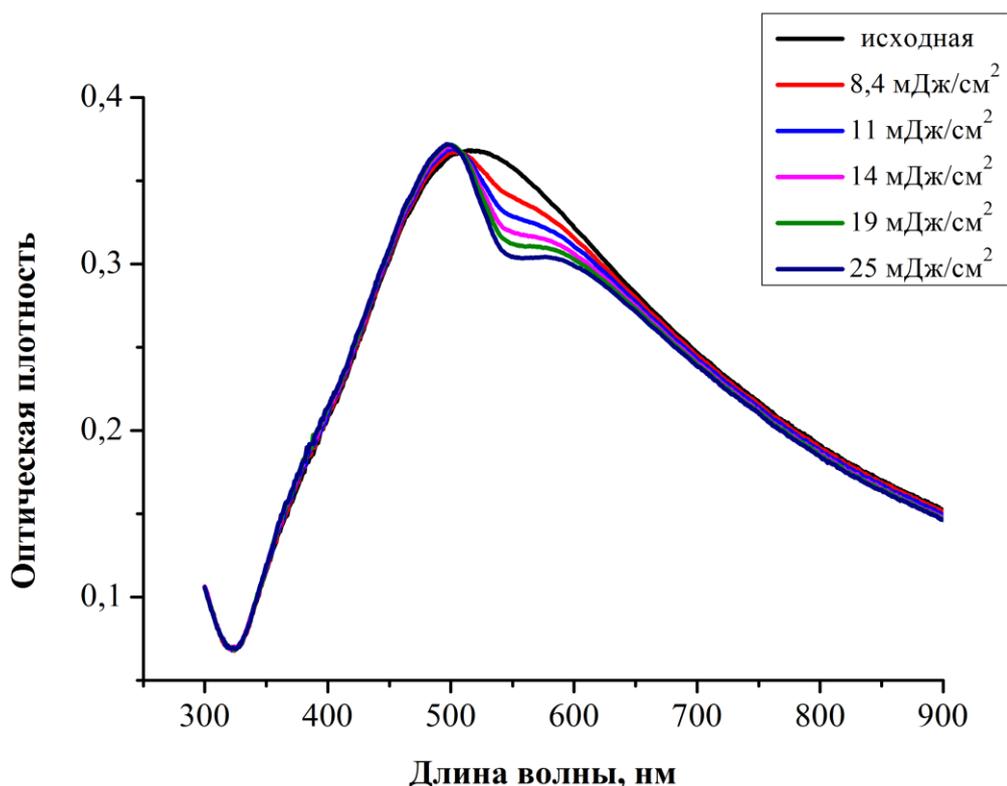


Рис. 59. Спектр экстинкции гранулированной серебряной пленки измеренные до и после облучения

На рис. 60 построена разность оптических плотностей, измеренных до и после облучения.

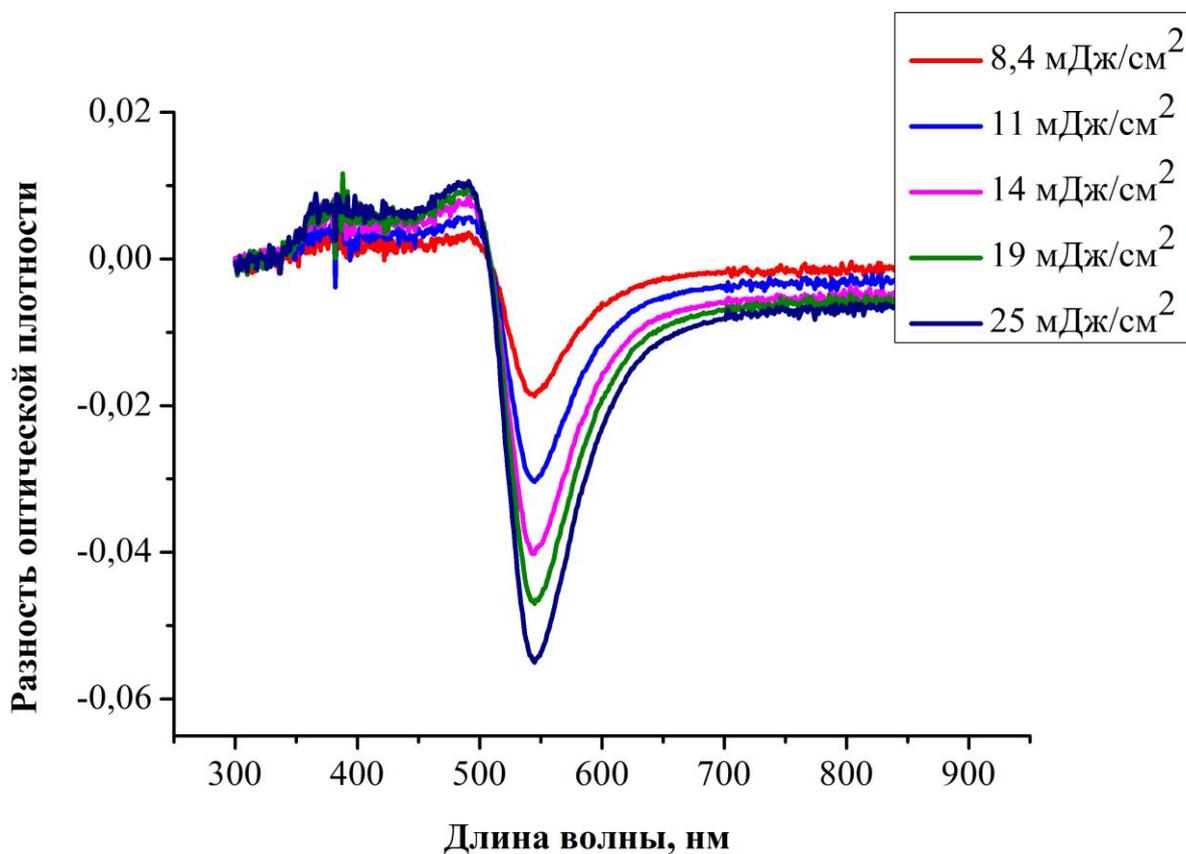


Рис. 60. Спектры разности оптических плотностей измеренных до и после облучения

Для интерпретации полученных спектров можно использовать выведенные ранее выражения для сечения поглощения металлических наночастиц, связанные с возбуждением в них плазмонных резонансов. Пусть Ω – частота, на которой сечение поглощения металлической наночастицей достигает максимума. В результате резонансного воздействия импульсного лазерного излучения наночастицы нагреваются, причем увеличение температуры неодинаково для частиц разной формы, так как сечение поглощения зависит от резонансной частоты плазмонного резонанса, локализованного в наночастице. Изменение температуры максимально для тех частиц, резонансные частоты которых Ω близки к частоте действующего лазерного излучения Ω_L . В результате термически активированного испарения уменьшается объем наночастиц, что приводит к соответствующему уменьшению сечения поглощения тех частиц, которые подверглись наибольшему нагреву.

Параллельно с испарением усиливается поверхностная диффузия, что приводит к изменению формы частицы и соответствующему сдвигу ее резонансной частоты. Как правило, это сдвиг в коротковолновую сторону, так как метастабильные уплощенные частицы, образовавшиеся в процессе напыления гранулированной пленки, стремятся приобрести более округлую форму.

Спектр разности оптических плотностей (ΔD) содержит два вклада, обусловленных изменением объема и изменением формы наночастиц. Уменьшение объема резонансных наночастиц приводит к появлению провала, симметричного по отношению к частоте действующего излучения. Изменение формы приводит к появлению антисимметричного вклада в разностный спектр. Аналитически разностные спектры могут быть описаны функций вида

$$\Delta D(\omega) = -A \frac{(\gamma_a/2)^2}{(\omega - \Omega_A)^2 + (\gamma_a/2)^2} + B \frac{(\omega - \Omega_B)(\gamma_b/2)^3}{[(\omega - \Omega_A)^2 + (\gamma_a/2)^2]^2}, \quad (77)$$

где A и B – некоторые константы, Ω_A Ω_B – частоты, описывающие спектральный контур для испарения и изменения формы, а γ_a и γ_b – величины, отличающиеся от однородной ширины γ только из-за полевого уширения спектральных провалов:

$$\gamma_a = \gamma \left(1 + \frac{3 F}{4 F_0} \right), \quad (78)$$

$$\gamma_b = \gamma \left(1 + \frac{3 F}{2 F_0} \right),$$

где F - энергия лазерного импульса, F_0 - величина, определяемая теплопроводностью подложки.

Для определения параметров γ_a и γ_b проводится аппроксимация разностных спектров (рис.60) функцией вида (77). В рамках данного пособия будем рассматривать упрощенную модель, допуская, что $\Omega_A = \Omega_B = \Omega$, $\gamma_a = \gamma_b = \gamma_i$. Тогда функция для аппроксимации будет иметь вид

$$\Delta D(\omega) = -A \frac{(\gamma_i/2)^2}{(\omega - \Omega)^2 + (\gamma_i/2)^2} + B \frac{(\omega - \Omega)(\gamma_i/2)^3}{[(\omega - \Omega)^2 + (\gamma_i/2)^2]^2}. \quad (79)$$

На рисунке 61 приведен измеренный разностный спектр, его аппроксимация, а также отдельно показан вклад испарения и изменения формы. Аппроксимация выполнена при параметрах $A=0.0158$, $B=0.055$, $\Omega = 3.61 \cdot 10^{15} \text{ c}^{-1}$, $\gamma_i = 6.25 \cdot 10^{14} \text{ c}^{-1}$

Для исключения влияния полевого уширения на оценку однородной ширины плазмонного резонанса выполняется экстраполяция ширин, полученных при разных значениях интенсивности лазерного излучения, к нулевой интенсивности. Результат такой экстраполяции представлен на рис. 62.

Мы рассмотрели аппроксимацию разностных спектров в упрощенной модели. Пример построения функции вида (79) и сравнения ее с экспериментальными данным приведено в приложении 21. Полное рассмотрение приведено в работе [13]

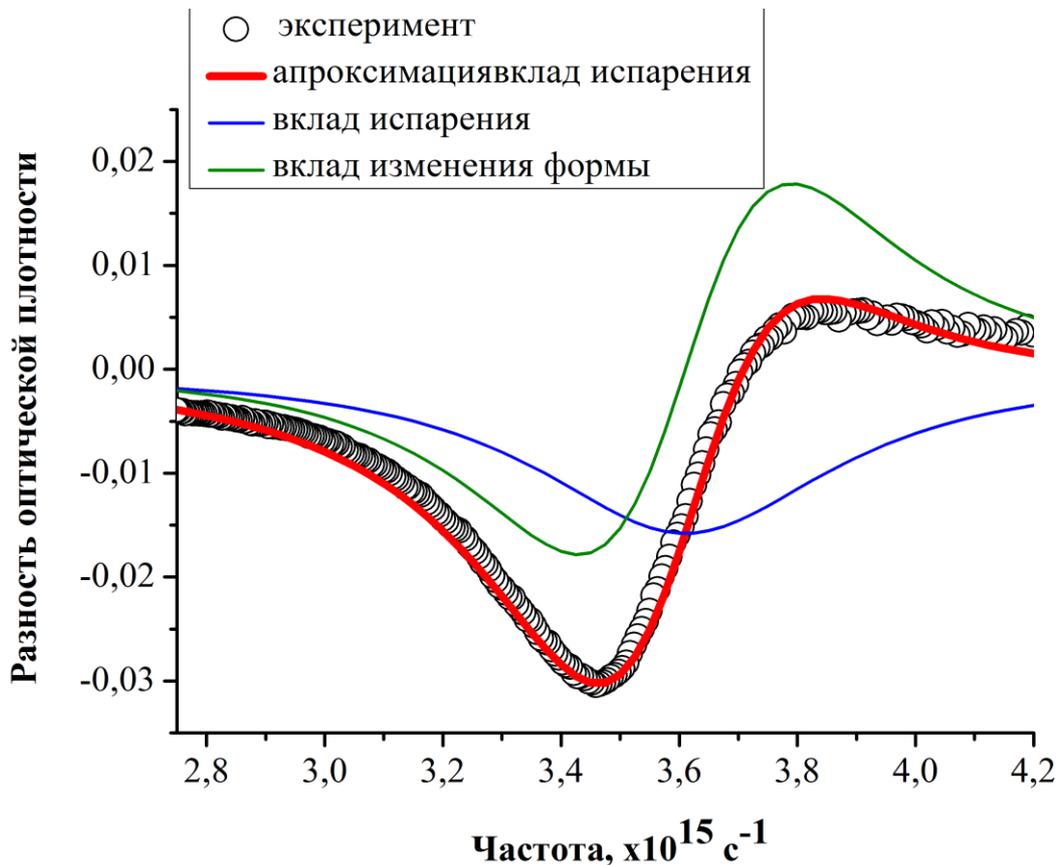


Рисунок 61. Экспериментальный разностный спектр, его теоретическая аппроксимация, вклад испарения и изменения формы. Аппроксимация выполнена при параметрах $A=0.0158$, $B=0.055$, $\Omega = 3.61 \cdot 10^{15} \text{ c}^{-1}$, $\gamma_i = 6.25 \cdot 10^{14} \text{ c}^{-1}$

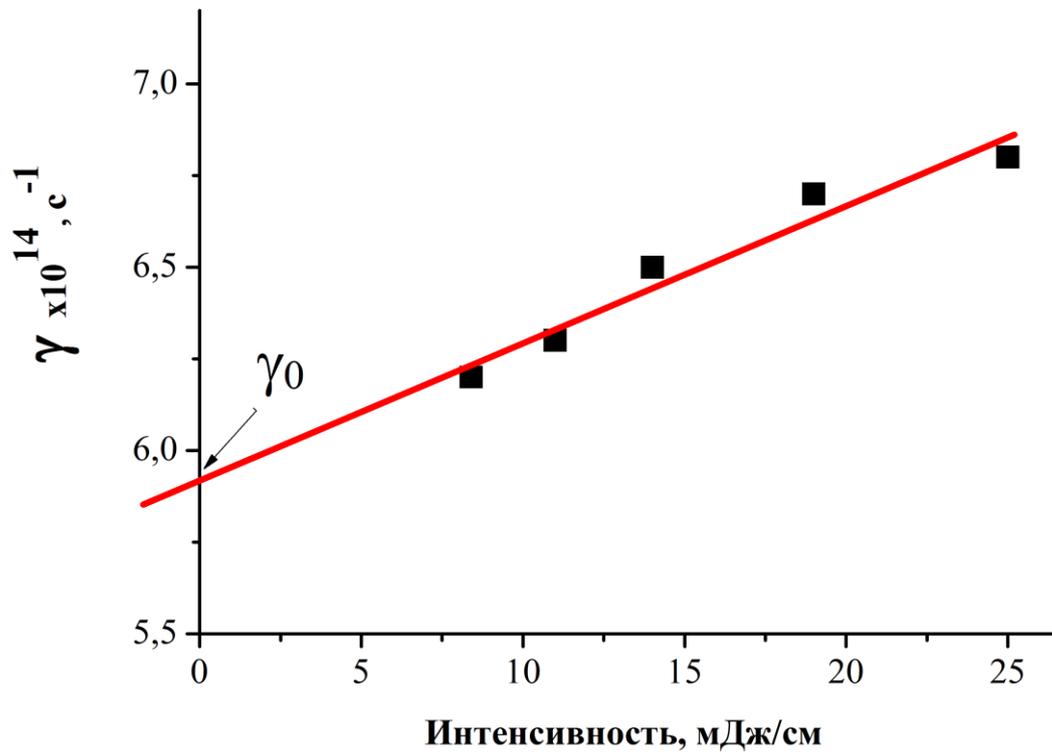


Рисунок 62. Определение однородной ширины γ путем экстраполяции

1.15 ВОЗБУЖДЕНИЕ ПОВЕРХНОСТНОГО ПЛАЗМОНА. КОНФИГУРАЦИЯ КРЕЧМАНА

В предыдущих разделах данного пособия мы рассматривали возбуждение коллективных колебаний электронов в металлических наночастицах – локализованный плазмонный резонанс. Перейдем к рассмотрению возбуждения принципиально другого коллективного колебания электронов – поверхностного резонанса. Поверхностный плазмонный резонанс – плазмон-поляритон – это распространяющаяся колебание электронов проводимости на границе металл-диэлектрик.

Для возбуждения плазмонного резонанса необходимо, чтобы волновой вектор поверхностного плазмон-поляритона совпадал с проекцией волнового вектора падающего излучения на границу раздела сред металл/диэлектрик. Для этого в сплошных металлических тонкопленочных структурах необходимо использовать конфигурации Кречмана или Отто. Для расчетов в данной работе предлагается использовать конфигурацию Кречмана (рисунок 63). В данной конфигурации луч с волновым вектором k падает на тонкую металлическую пленку со стороны призмы под углом падения θ . Тогда проекция волнового вектора на ось x можно определить как

$$k_x = k \sin \theta = \frac{\omega}{c} \sqrt{\epsilon_{pr}} \sin \theta, \quad (80)$$

где ϵ_{pr} - диэлектрическая проницаемость материала призмы.

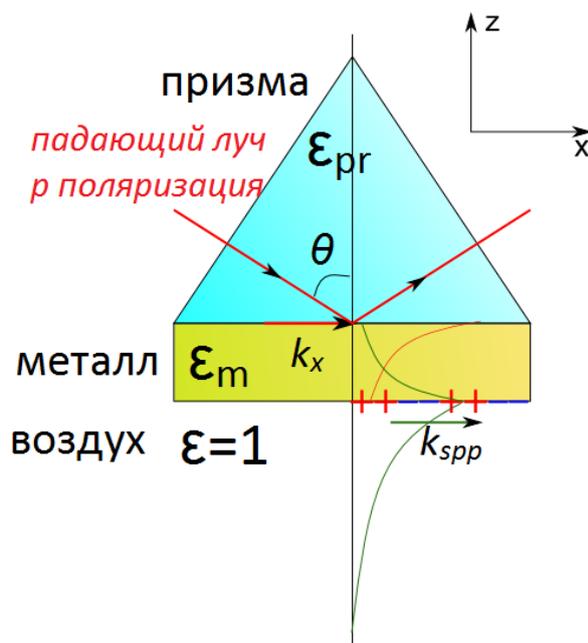


Рисунок 63. Конфигурация Кречмана для возбуждения поверхностного плазмон-поляритона на границе металл-воздух.

В области частот, где действительная часть диэлектрической проницаемости материала металлической пленки отрицательна, свет, распространяясь внутри металла, не осциллирует, а монотонно затухает или нарастает. Если угол падения света на границу стекла и металла больше угла полного внутреннего отражения от границы стекло – воздух, то в воздухе будет только эванесцентная волна, затухающая при движении от границы металл – воздух в сторону воздуха. Поведение же поля внутри металлического слоя может быть различным. При резонансном возбуждении поверхностного плазмон-поляритона поле в металле затухает от границы металл – воздух в сторону призмы. Соответственно, при движении от призмы к воздуху амплитуда поля растет, на чем и основаны все применения плазмонного резонанса. Однако для эффективного возбуждения плазмон-поляритона на границе металл – воздух толщина металлической пленки должна быть сравнима с глубиной проникновения поля в металл в обычных условиях. Волновой вектор поверхностного плазмон-поляритона (k_{SPP}) определяется как

$$k_{spp} = \frac{\omega}{c} \sqrt{\frac{\varepsilon'_m \varepsilon_{air}}{\varepsilon'_m + \varepsilon_{air}}} = \frac{\omega}{c} \sqrt{\frac{\varepsilon'_m}{\varepsilon'_m + 1}}, \quad (81)$$

где ε'_m - диэлектрическая проницаемость металлического слоя, ε_{air} – диэлектрическая проницаемость воздуха, принятая во втором равенстве за единицу.

Условием возбуждения поверхностного плазмона является совпадение величины k_x и k_{spp} . В случае, изображенном на рисунке 63, данное равенство преобразуется

$$k_x = k_{spp},$$

$$\frac{\omega}{c} \sqrt{\varepsilon_{pr}} \sin\theta = \frac{\omega}{c} \sqrt{\frac{\varepsilon'_m}{\varepsilon'_m + 1}},$$

$$\sqrt{\varepsilon_{pr}} \sin\theta = \sqrt{\frac{\varepsilon'_m}{\varepsilon'_m + 1}}. \quad (82)$$

Замечания:

1. Из соотношения 82 становится очевидным необходимость использовать призмы. Так как ε'_m имеет большое отрицательное значение, правая часть данного равенства больше 1. При условии

отсутствия призмы левая часть станет равной синусу угла падения и, следовательно, не может превышать единицу. Т.е. при отсутствии призмы проекция волнового вектора падающего излучения на границу раздела сред становится меньше волнового вектора плазмон-поляритона на данной частоте.

2. В выражении (82) отсутствует величина частоты падающего излучения в явном виде. Зависимость от частоты входит в это соотношение через дисперсию диэлектрической проницаемости материалов, прежде всего металла.

3. Проникающая эванесцентная волна не может преобразоваться в распространяющийся в воздухе свет при достижении границы металл – воздух из-за несовпадения волновых векторов. В обе стороны от границы металл-воздух возбуждаются вторичные эванесцентные волны при распространении вдоль границы плазмон-поляритона.

4. На границе с внешней стороной металлической пленки может так же располагаться материал с диэлектрической проницаемостью ϵ_D . Тогда выражение (82) будет выглядеть как

$$\sqrt{\epsilon_{pr}} \sin\theta = \sqrt{\frac{\epsilon'_m \epsilon_D}{\epsilon'_m + \epsilon_D}}. \quad (83)$$

5. Выражение (82) дает условие для возбуждения плазмона. Для регистрации плазмона измеряют спектр отражения от структуры. Возбуждение плазмона проявляется как минимум в спектре отражения. Для расчета спектральных и угловых зависимостей может быть использована модель трехслойной структуры. В то же время известно, что полоса поверхностного плазмона хорошо аппроксимируется лоренцовым контуром.

1.16 ОТРАЖЕНИЕ ТРЕХСЛОЙНОЙ СИСТЕМЫ

Рассмотрим процессы отражения и пропускания света при падении на трехслойную структуру. Для этого необходимо записать коэффициенты отражения и пропускания света при падении на границу раздела двух сред с диэлектрическими функциями ε_1 и ε_2 под углом падения θ (рисунок 64).

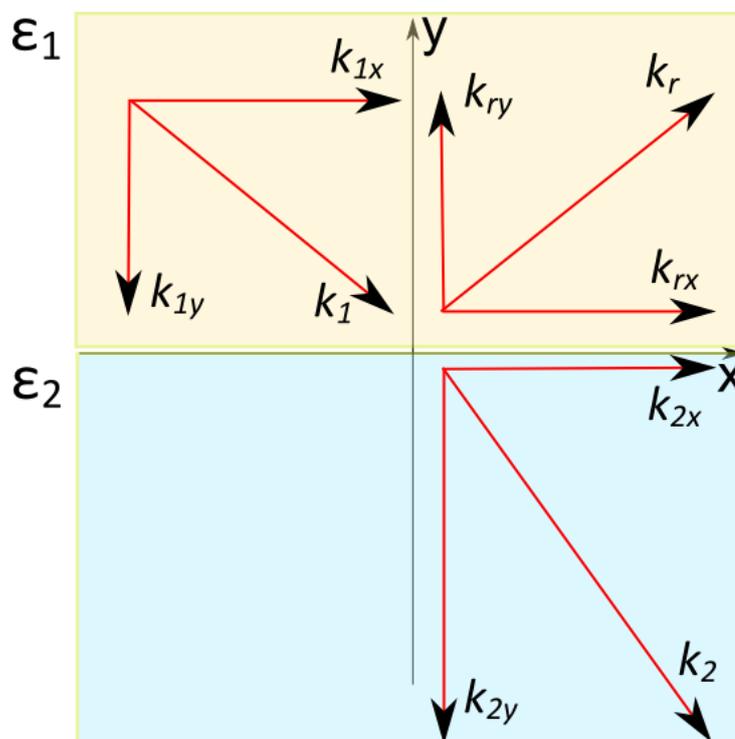


Рисунок 64. Отражение и пропускание света при падении на границу раздела двух сред

При падении света на границу раздела двух сред амплитудные коэффициенты отражения (r) и пропускания (t) могут быть получены для s и p поляризации как

$$\begin{aligned}
 r_{s12} &= \frac{k_{1y} - k_{2y}}{k_{1y} + k_{2y}}, \\
 t_{s12} &= \frac{2k_{1y}}{k_{1y} + k_{2y}}, \\
 r_{p12} &= \frac{\varepsilon_2 k_{1y} - \varepsilon_1 k_{2y}}{\varepsilon_2 k_{1y} + \varepsilon_1 k_{2y}}, \\
 t_{p12} &= \frac{2\varepsilon_2 k_{1y}}{\varepsilon_2 k_{1y} + \varepsilon_1 k_{2y}}.
 \end{aligned}
 \tag{84}$$

где проекции волновых векторов могут быть получены как

$$k_{1y} = \frac{\omega}{c} \sqrt{\varepsilon_1} \cos \theta, \quad (85)$$

$$k_{2y} = \frac{\omega}{c} \sqrt{\varepsilon_2 - \varepsilon_1 \sin^2 \theta}.$$

В случае трехслойной структуры распространение света существенно усложняется (рисунок 65). Будем считать, что конечной толщиной d обладает пленка с диэлектрической проницаемостью ε_2 между полубесконечными слоями ε_1 и ε_3 .

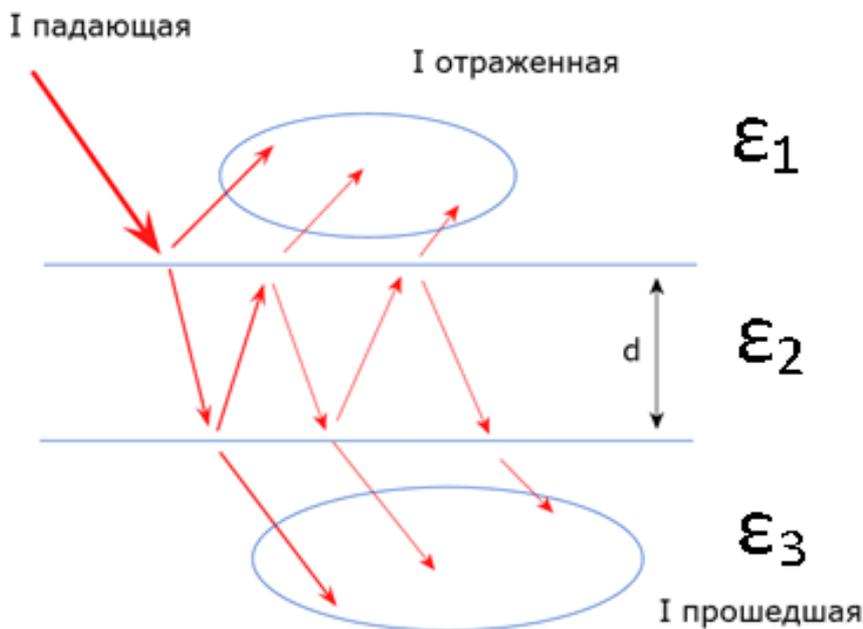


Рисунок 65. Отражение и пропускание трехслойной структуры

Для расчета коэффициента отражения с учетом всех переотраженных лучей получаем следующие выражения для s и p поляризаций:

$$R_s = \left| \frac{r_{s12} + r_{s23} \cdot \exp(2i \cdot k_{2y} \cdot d)}{1 + r_{s12} \cdot r_{s23} \cdot \exp(2i \cdot k_{2y} \cdot d)} \right|^2, \quad (86)$$

$$R_p = \left| \frac{r_{p12} + r_{p23} \cdot \exp(2i \cdot k_{2y} \cdot d)}{1 + r_{p12} \cdot r_{p23} \cdot \exp(2i \cdot k_{2y} \cdot d)} \right|^2.$$

Для расчета спектров отражения, регистрируемых в конфигурации Кречмана, также может быть применена трехслойная модель, при этом ε_1 – диэлектрическая проницаемость призмы (квадрат показателя преломления материала призмы), $\varepsilon_2 = \varepsilon_m = \varepsilon'_m + i\varepsilon''_m$ – комплексная диэлектрическая проницаемость металлического слоя толщиной d , ε_3 – диэлектрическая проницаемость воздуха $\varepsilon_3=1$.

Пример рассчитанной угловой зависимости коэффициента отражения от золотой пленки в конфигурации Кречмана представлен на рисунке 66. Для расчетов была использована золотая пленка толщиной 50 нм. Длина волны падающего излучения составляла 580 нм. Величины диэлектрических констант золота ($\varepsilon'_{Au} = -8,49$, $\varepsilon''_{Au} = 1,6$) были взяты с сайта [1]. В расчетах показатель преломления призмы соответствовал 1.5. Провал в спектре отражения для p -поляризации соответствует возбуждению плазмонной моды на границе золото-воздух. Пример программы для расчета спектров отражения, выполненный с помощью Wolfram Mathematica, приведен в приложении 22.

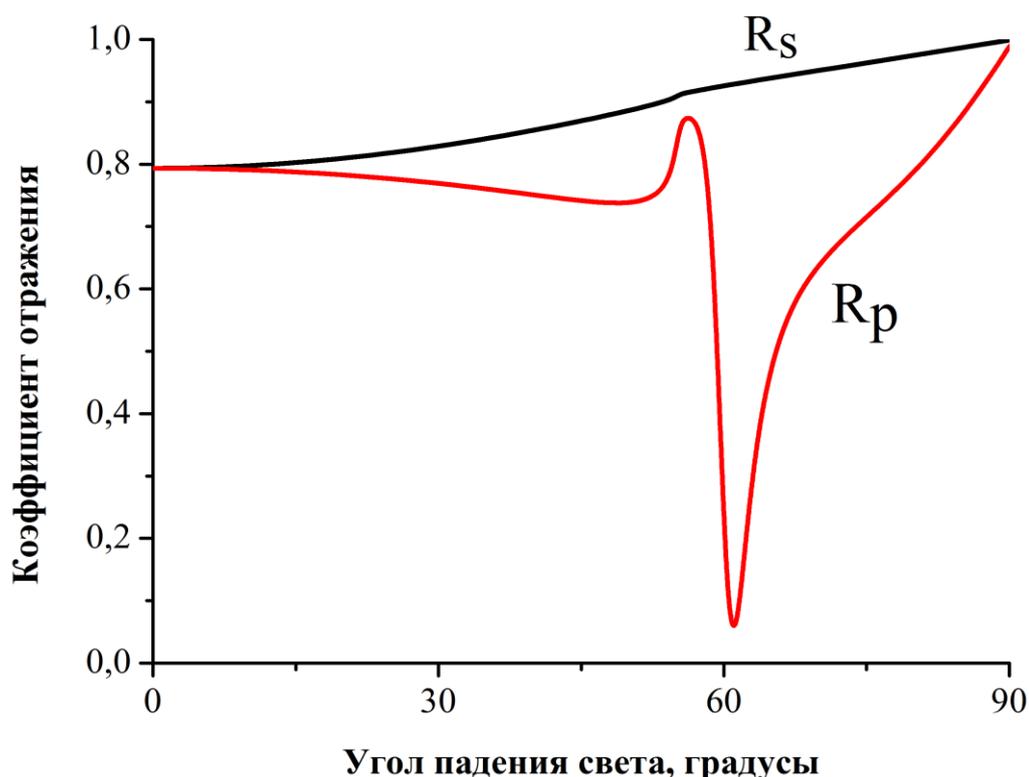


Рисунок 66. Спектры отражения от золотой пленки, измеренные в конфигурации Кречмана для s и p -поляризованного света. Толщина пленки 50 нм, длина волны падающего излучения 580 нм.

1.17 ВОЗБУЖДЕНИЕ ПОВЕРХНОСТНОГО ПЛАЗМОНА НА ДИФРАКЦИОННОЙ РЕШЕТКЕ

Как уже отмечалось ранее, для возбуждения плазмонного резонанса в тонкопленочных металлических структурах необходимо, чтобы волновой вектор плазмон-поляритона (поверхностного плазмона) совпадал с проекцией волнового вектора падающего излучения на границу раздела сред металл/диэлектрик. Поверхностный плазмон-поляритон обладает большим волновым вектором по сравнению с модулем волнового вектора излучения той же частоты в воздухе. В конфигурации Кречмана для увеличения волнового вектора падающего излучения использовалась призма. Альтернативным подходом является использование дифракционных решеток, нанесенных на поверхность металлического слоя.

Если свет с частотой ω падает под углом падения θ на поверхность металлического слоя с нанесенной решеткой с периодом a , то интенсивность падающей волны оказывается промодулированной с периодом a_d , что эквивалентно увеличению проекции волнового вектора на поверхность металлического слоя k_x на величину обратного вектора решетки

$$k_x = \frac{\omega}{c} \sin \theta + \frac{2\pi N}{a_d}, \quad (87)$$

где N - целое число.

Тогда условие возбуждения плазмонного резонанса приобретает вид

$$\frac{\omega}{c} \sin \theta + \frac{2\pi n}{a_d} = \frac{\omega}{c} \sqrt{\frac{\epsilon'_m}{\epsilon'_m + 1}}. \quad (88)$$

Стоит заметить, что, в отличие от условия (82), в условии (88) частота падающего излучения присутствует как в явном виде, так и определяет величину диэлектрической проницаемости металлического слоя. Плазмонный резонанс также проявляет себя как минимум в спектре отражения.

2 ЗАДАНИЯ ДЛЯ ВЫПОЛНЕНИЯ

ДРУДЕ-МЕТАЛЛЫ И РЕАЛЬНЫЕ МАТЕРИАЛЫ

1. Построить дисперсии действительной и мнимой части диэлектрической проницаемости некоего Друде-материала, описанного в литературе.
2. В литературных источниках найти данные о дисперсии действительной и мнимой части диэлектрической проницаемости реального металла. Провести аппроксимацию с помощью Друде-модели.
3. Рассчитать дисперсию действительной и мнимой частей диэлектрической проницаемости с учетом рассеяния электронов на поверхности наночастиц.
4. Используя дисперсии действительной и мнимой части диэлектрической проницаемости реального металла, описанного в литературе, рассчитать дисперсии действительной и мнимой части проводимости. Построить дисперсии и диаграмму Коул-Коула. Определить скорость релаксации зарядов.

ДРУДЕ-МЕТАЛЛЫ И РЕАЛЬНЫЕ МАТЕРИАЛЫ

1. Произвольно выбрать параметры Друде-материала, из которого сделана наночастица. Рассчитать спектральную зависимость усиления поля внутри такой наночастицы в вакууме.
2. Исследовать влияние параметров Друде-материала и окружающей среды на спектральную зависимость усиления поля внутри наночастицы.
3. Рассчитать спектральную зависимость усиления вблизи к поверхности плазмонной наночастицы в вакууме. Исследовать влияние положения точки наблюдения относительно выбранной системы координат и расстояния от поверхности наночастицы до точки наблюдения на спектральную зависимость усиления поля.

РАСЧЕТ СПЕКТРОВ СЕЧЕНИЯ ЭКСТИНКЦИИ СФЕРИЧЕСКИХ НАНОЧАСТИЦ

1. Выбрать любой Друде-материал. Рассчитать спектр сечения экстинкции сферической наночастицы, сделанной из этого Друде-материала. Наночастица находится в вакууме.

2. Исследовать влияние параметров Друде-материала и показателя преломления окружающей среды на спектры сечения экстинкции сферических наночастиц.

3. Выбрать любой плазмонный металл. Рассчитать спектры сечения экстинкции сферической наночастицы из этого металла при нескольких размерах наночастиц в квазистатическом приближении (считать, что частицы находятся в вакууме).

4. С использованием калькуляторов МИ рассчитать спектры сечения поглощения, рассеяния и экстинкции сферической наночастицы из этого металла при тех же размерах наночастиц.

5. Сравнить спектры экстинкции, рассчитанные в квазистатическом приближении и с использованием теории МИ.

6. Проследить, как эволюционируют спектры сечения поглощения, рассеяния и экстинкции при увеличении размеров наночастиц (используя калькулятор МИ).

РАСЧЕТ СПЕКТРОВ СЕЧЕНИЯ ЭКСТИНКЦИИ ЭЛЛИПТИЧЕСКИХ И СФЕРОИДНЫХ НАНОЧАСТИЦ

1. Задать параметры Друде-материала. Рассчитать спектры сечения экстинкции полос плазмонного резонанса для эллиптической наночастицы. Среду, в которой находится наночастица, выбрать произвольно. Сравнить спектры полос сечения экстинкции наночастицы со спектром сечения экстинкции сферической наночастицы из того же материала (с тем же объемом, в той же среде)

2. Сравнить спектры сечения экстинкции сферической наночастицы со спектрами сплюснутой и вытянутой сфероидной наночастиц (при условии одинакового объема и эксцентриситета)

3. Исследовать влияние величины эксцентриситета на спектры неупорядоченного ансамбля сфероидных наночастиц.

СОБСТВЕННЫЕ КОЛЕБАНИЯ ПЛАЗМОННОГО ТИПА В СИСТЕМЕ ИЗ ДВУХ ЧАСТИЦ

1. Произвольно выбрать параметры Друде-материала. Рассчитать зависимость резонансных диэлектрические проницаемостей и частот/длин волн в системе, состоящих из двух сферических наночастиц, в зависимости от их размера

2. Рассчитать спектры сечения экстинкции плазмонных колебаний в системе из двух одинаковых сферических наночастиц, сделанных из произвольного Друде-материала.

3. Произвольно выбрать реальный металл. Рассчитать спектры сечения экстинкции плазмонных колебаний в системе из двух одинаковых сферических наночастиц, сделанных из выбранного металла.

УЛУЧШЕННАЯ КВАЗИСТАТИЧЕСКАЯ МОДЕЛЬ. НЕОДНОРОДНОЕ УШИРЕНИЕ.

1. Выбрать любой плазмонный металл. Используя данные о дисперсии его показателя преломления коэффициента поглощения, рассчитать спектры сечения экстинкции сферических наночастиц с учетом рассеяния света и эффекта деполяризации для наночастиц разных размеров.

2. В литературных источниках найти спектры поглощения красителя. Подобрать материал и размер сферической наночастицы так, чтобы плазмонная полоса наночастицы перекрывалась с полосой поглощения красителя

3. Исследовать, как явление рассеяния электронов на поверхности наночастиц влияет на спектры сечение экстинкции сферических наночастиц

4. Определить скорость затухания направленного движения заряда в островковых пленках с использованием экспериментальных данных, полученных методом выжигания долгоживущих спектральных провалов

ВОЗБУЖДЕНИЕ ПОВЕРХНОСТНОГО ПЛАЗМОНА. КОНФИГУРАЦИЯ КРЕЧМАНА

1. Выбрать металл, в литературных источниках найти его диэлектрические свойства (на нескольких длинах волн). Выбрать материал призмы, в литературных источниках найти его показатель преломления (на тех же длинах волн)

2. Рассчитать угловую зависимость коэффициента отражения в конфигурации Кречмана для выбранного металла и призмы на выбранных длинах волн. Считать, что на границе со внешней стороны пленки находится воздух.

3. Разработать сенсор, работающий на основе возбуждения поверхностного плазмона в тонкопленочных структурах с использованием конфигурации Кречмана.

Приложение 1.
Диэлектрические функции некоторых металлов [1]

Длина волны, мкм	Ag		Au		Cu	
	n	k	n	k	n	k
0,1879	1,07	1,212	1,28	1,188	0,94	1,337
0,1916	1,1	1,232	1,32	1,203	0,95	1,388
0,1953	1,12	1,255	1,34	1,226	0,97	1,44
0,1993	1,14	1,277	1,33	1,251	0,98	1,493
0,2033	1,15	1,296	1,33	1,277	0,99	1,55
0,2073	1,18	1,312	1,3	1,304	1,01	1,599
0,2119	1,2	1,325	1,3	1,35	1,04	1,651
0,2164	1,22	1,336	1,3	1,387	1,08	1,699
0,2214	1,25	1,342	1,3	1,427	1,13	1,737
0,2262	1,26	1,344	1,31	1,46	1,18	1,768
0,2313	1,28	1,357	1,3	1,497	1,23	1,792
0,2371	1,28	1,367	1,32	1,536	1,28	1,802
0,2426	1,3	1,378	1,32	1,577	1,34	1,799
0,249	1,31	1,389	1,33	1,631	1,37	1,783
0,2551	1,33	1,393	1,33	1,688	1,41	1,741
0,2616	1,35	1,387	1,35	1,749	1,41	1,691
0,2689	1,38	1,372	1,38	1,803	1,45	1,668
0,2761	1,41	1,331	1,43	1,847	1,46	1,646
0,2844	1,41	1,264	1,47	1,869	1,45	1,633
0,2924	1,39	1,161	1,49	1,878	1,42	1,633
0,3009	1,34	0,964	1,53	1,889	1,4	1,679
0,3107	1,13	0,616	1,53	1,893	1,38	1,729
0,3204	0,81	0,392	1,54	1,898	1,38	1,783
0,3315	0,17	0,829	1,48	1,883	1,34	1,821

0,3425	0,14	1,142	1,48	1,871	1,36	1,864
0,3542	0,1	1,419	1,5	1,866	1,37	1,916
0,3679	0,07	1,657	1,48	1,895	1,36	1,975
0,3815	0,05	1,864	1,46	1,933	1,33	2,045
0,3974	0,05	2,07	1,47	1,952	1,32	2,116
0,4133	0,05	2,275	1,46	1,958	1,28	2,207
0,4305	0,04	2,462	1,45	1,948	1,25	2,305
0,4509	0,04	2,657	1,38	1,914	1,24	2,397
0,4714	0,05	2,869	1,31	1,849	1,25	2,483
0,4959	0,05	3,093	1,04	1,833	1,22	2,564
0,5209	0,05	3,324	0,62	2,081	1,18	2,608
0,5486	0,06	3,586	0,43	2,455	1,02	2,577
0,5821	0,05	3,858	0,29	2,863	0,7	2,704
0,6168	0,06	4,152	0,21	3,272	0,3	3,205
0,6595	0,05	4,483	0,14	3,697	0,22	3,747
0,7045	0,04	4,838	0,13	4,103	0,21	4,205
0,756	0,03	5,242	0,14	4,542	0,24	4,665
0,8211	0,04	5,727	0,16	5,083	0,26	5,18
0,892	0,04	6,312	0,17	5,663	0,3	5,768
0,984	0,04	6,992	0,22	6,35	0,32	6,421
1,088	0,04	7,795	0,27	7,15	0,36	7,217
1,216	0,09	8,828	0,35	8,145	0,48	8,245
1,393	0,13	10,1	0,43	9,519	0,6	9,439
1,61	0,15	11,85	0,56	11,21	0,76	11,12
1,937	0,24	14,08	0,92	13,78	1,09	13,43

Приложение 2.

Расчет диэлектрических функций Друде-материала с помощью Wolfram Mathematica

$$\text{In}[49]= \lambda_p = \frac{2 \times \pi \times 3 \times 10^8}{8 \times 10^{15}} ;$$

$$\lambda_{\gamma} = \frac{2 \times \pi \times 3 \times 10^8}{1 \times 10^{15}} ;$$

$$\epsilon_{\text{inf}} = 1^2 ;$$

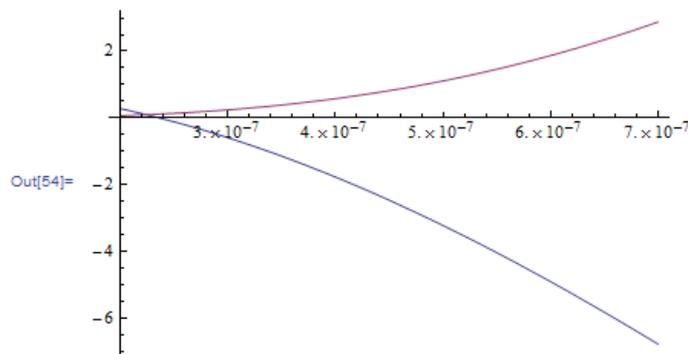
$$\text{ReE}[\lambda_] := \epsilon_{\text{inf}} - \frac{1}{\lambda_p^2 \times \left(\frac{1}{\lambda^2} + \frac{1}{\lambda_{\gamma}^2} \right)} ;$$

$$\text{ImE}[\lambda_] := \frac{\lambda}{\lambda_{\gamma} \times \lambda_p^2 \times \left(\frac{1}{\lambda^2} + \frac{1}{\lambda_{\gamma}^2} \right)} ;$$

```
Plot[{ReE[λ], ImE[λ]}, {λ, 200×10-9, 700×10-9}, PlotRange → All]
```

```
ReEx = Table[{109 × x, ReE[x]}, {x, 200. × 10-9, 900. × 10-9, 5. × 10-9}; TraditionalForm[ReEx]
```

```
ImEx = Table[{109 × x, ImE[x]}, {x, 200. × 10-9, 900. × 10-9, 5. × 10-9}; TraditionalForm[ImEx]
```



Out[55]/TraditionalForm=

200.	0.287515
205.	0.251867
210.	0.21538
215.	0.178058
220.	0.139904
225.	0.10092
230.	0.0611093
235.	0.0204758
240.	-0.0209775
245.	-0.0632472
250.	-0.10633
255.	-0.150223
260.	-0.194921
265.	-0.240422

Приложение 3. Аппроксимация экспериментально полученной диэлектрической проницаемости с помощью аналитического выражения для Друде-модели

```

In[119]= nk = Import["dataAg.txt", "Table"]; (*импорт данных*)

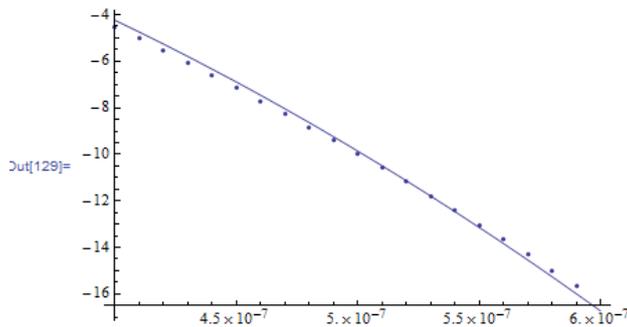
(*расчет действительной и мнимой части диэлектрической проницаемости их экспериментальных данных*)
ReeE = Table[{10-6 × nk[[i]][[1]], (nk[[i]][[2]])2 - (nk[[i]][[3]])2}, {i, 11, 30}];
ImeE = Table[{10-6 × nk[[i]][[1]], 2 × (nk[[i]][[2]]) × (nk[[i]][[3]])}, {i, 11, 30}];

(*теоритический расчет действительной и мнимой части диэлектрической проницаемости*)
ωp = 14.9 × 1015;
γ0 = 5.5 × 1013;
λp =  $\frac{2 \times \pi \times 3 \times 10^8}{\omega p}$ ;
λγ =  $\frac{2 \times \pi \times 3 \times 10^8}{\gamma 0}$ ;
εinf = 2.42;
ReeT[λ_] := εinf -  $\frac{1}{\lambda p^2 \times \left(\frac{1}{\lambda^2} + \frac{1}{\lambda \gamma^2}\right)}$ ;
ImeT[λ_] :=  $\frac{\lambda}{\lambda \gamma \times \lambda p^2 \times \left(\frac{1}{\lambda^2} + \frac{1}{\lambda \gamma^2}\right)}$ ;

(*сравнение данных*)
Show[Plot[ReeT[λ], {λ, 400 × 10-9, 600 × 10-9}, PlotRange → All], ListPlot[ReeE, PlotRange → All]]
Show[Plot[ImeT[λ], {λ, 400 × 10-9, 600 × 10-9}, PlotRange → All], ListPlot[ImeE, PlotRange → All]]

(*Вывод данных*)
ReeTx = Table[{109 × x, ReeT[x]}, {x, 400. × 10-9, 600. × 10-9, 2.5 × 10-9}; TraditionalForm[ReeTx]
ImeTx = Table[{109 × x, ImeT[x]}, {x, 400. × 10-9, 600. × 10-9, 2.5 × 10-9};
TraditionalForm[ImeTx]

```



Приложение 4. Свойства некоторых металлов [2]

Element	Fermi Energy eV	Fermi Temperature $\times 10^4$ K	Fermi Velocity $\times 10^6$ m/s
Li	4.74	5.51	1.29
Na	3.24	3.77	1.07
K	2.12	2.46	0.86
Rb	1.85	2.15	0.81
Cs	1.59	1.84	0.75
Cu	7.00	8.16	1.57
Ag	5.49	6.38	1.39
Au	5.53	6.42	1.40
Be	14.3	16.6	2.25
Mg	7.08	8.23	1.58
Ca	4.69	5.44	1.28
Sr	3.93	4.57	1.18
Ba	3.64	4.23	1.13
Nb	5.32	6.18	1.37
Fe	11.1	13.0	1.98
Mn	10.9	12.7	1.96
Zn	9.47	11.0	1.83
Cd	7.47	8.68	1.62
Hg	7.13	8.29	1.58

Al	11.7	13.6	2.03
Ga	10.4	12.1	1.92
In	8.63	10.0	1.74
Tl	8.15	9.46	1.69
Sn	10.2	11.8	1.90
Pb	9.47	11.0	1.83
Bi	9.90	11.5	1.87
Sb	10.9	12.7	1.96

Приложение 5. Пример расчета дисперсий действительной и мнимой частей диэлектрической проницаемости с учетом рассеяния электронов на поверхности наночастиц

```

ωp = 14.9 × 1015; (*задание параметров материала и размера наночастиц*)
γ0 = 5.5 × 1013;
vF = 1.36 × 106;
A = 1;
a = 2.5 × 10-9;
λp =  $\frac{2 \times \pi \times 3 \times 10^8}{\omega p}$ ;
λγ =  $\frac{2 \times \pi \times 3 \times 10^8}{\gamma 0 + A \times \frac{vF}{a}}$ ;
εinf = 2.42;
ReET[λ_] := εinf -  $\frac{1}{\lambda p^2 \times \left(\frac{1}{\lambda^2} + \frac{1}{\lambda \gamma^2}\right)}$ ; (*расчет дисперсии диэлектрической проницаемости*)
ImET[λ_] :=  $\frac{\lambda}{\lambda \gamma \times \lambda p^2 \times \left(\frac{1}{\lambda^2} + \frac{1}{\lambda \gamma^2}\right)}$ ;
Plot[ReET[λ], {λ, 400 × 10-9, 600 × 10-9}, PlotRange → All] (*графическое и табличное представление данных*)
Plot[ImET[λ], {λ, 400 × 10-9, 600 × 10-9}, PlotRange → All]
ReETx = Table[{109 × x, ReET[x]}, {x, 400. × 10-9, 600. × 10-9, 2.5 × 10-9}; TraditionalForm[ReETx]
ImETx = Table[{109 × x, ImET[x]}, {x, 400. × 10-9, 600. × 10-9, 2.5 × 10-9};
TraditionalForm[ImETx]

```

Приложение 6. Пример расчета дисперсий действительной и мнимой частей проводимости металлов.

```

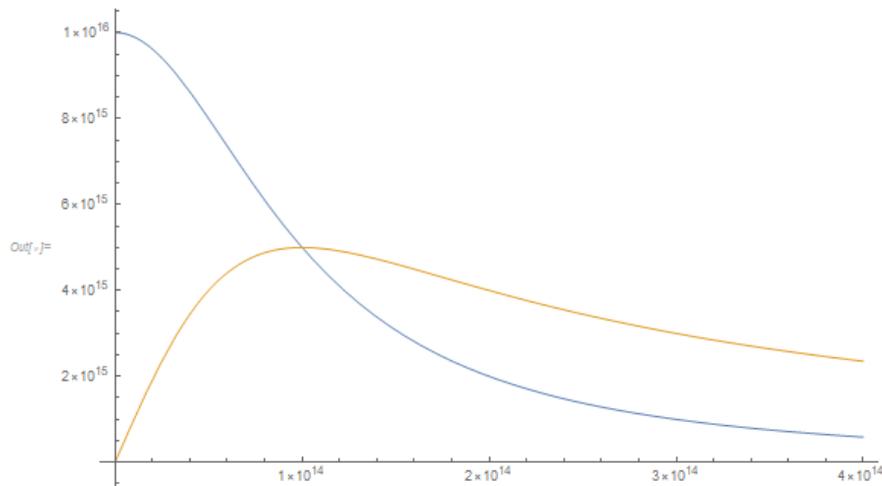
σ[ω_]:= σ0 = 1016; τ = 10-14; (*задание параметров*)
σ[ω_] :=  $\frac{\sigma_0}{1 - i \omega \times \tau}$ ; (*задание дисперсии проводимости*)

Plot[{Re[σ[ω]], Im[σ[ω]]}, {ω, 1011, 4 × 1014}, PlotRange -> All] (*графический вывод данных*)

σData = Table[{10-12 × ω, 10-15 × Re[σ[ω]], 10-15 × Im[σ[ω]]}, {ω, 1015, 1016, 0.25 × 1015}] // N; (*табличный вывод данных*)

TraditionalForm[σData]

```



```

σ[ω_]/TraditionalForm=


|       |            |          |
|-------|------------|----------|
| 1000. | 0.0990099  | 0.990099 |
| 1250. | 0.063593   | 0.794913 |
| 1500. | 0.0442478  | 0.663717 |
| 1750. | 0.0325468  | 0.569569 |
| 2000. | 0.0249377  | 0.498753 |
| 2250. | 0.0197141  | 0.443568 |
| 2500. | 0.0159744  | 0.399361 |
| 2750. | 0.0132057  | 0.363156 |
| 3000. | 0.0110988  | 0.332963 |
| 3250. | 0.0094585  | 0.307401 |
| 3500. | 0.00815661 | 0.285481 |


```

Приложение 7. Пример расчета дисперсий проводимости при известных дисперсиях оптических констант

```

ε0 = 12;
a = 10 × 10-9;
ρ = 25 × 10-9;

(*импорт оптических констант*)
nk = Import["Ag1.txt", "Table"];
      импорт

(*расчет диэлектрической проницаемости и поляризуемости наночастиц*)
ε = Table[{10-6 × nk[[i]][[1]], (nk[[i]][[2]])2 - (nk[[i]][[3]])2 + 2 i (nk[[i]][[2]] × (nk[[i]][[3]]))}, {i, 1, 201}];
      таблица значений

α = Table[ $\frac{\epsilon[[i]][[2]] - \epsilon_0}{\epsilon[[i]][[2]] + 2 \times \epsilon_0} \times a^3$ , {i, 1, 201}];
      таблица значений

αp = Table[ $\frac{2 \times \alpha[[i]]}{2 \times \alpha[[i]] + \rho^3}$ , {i, 1, 201}];
      таблица значений

αn = Table[ $\frac{2 \times \alpha[[i]]}{2 \times \alpha[[i]] + \rho^3}$ , {i, 1, 201}];
      таблица значений

(*расчет спектров сечения экстинкции*)

σpex = Table[{103 × nk[[i]][[1]], 1018 ×  $\frac{8 \times 3.14^2 \times \sqrt{\epsilon_0}}{nk[[i]][[1]] \times 10^{-6}}$  × Im[αp[[i]]]}, {i, 30, 160}];
      таблица значений                                мнимая часть

σnex = Table[{103 × nk[[i]][[1]], 1018 ×  $\frac{8 \times 3.14^2 \times \sqrt{\epsilon_0}}{nk[[i]][[1]] \times 10^{-6}}$  × Im[αn[[i]]]}, {i, 30, 160}];
      таблица значений                                мнимая часть

(*вывод данных*)
ListPlot[{σpex, σnex}, PlotRange → All] (*вывод данных*)
      диаграмм                                       отображаемы... все

TraditionalForm[σpex]
      традиционная форма

TraditionalForm[σnex]
      традиционная форма

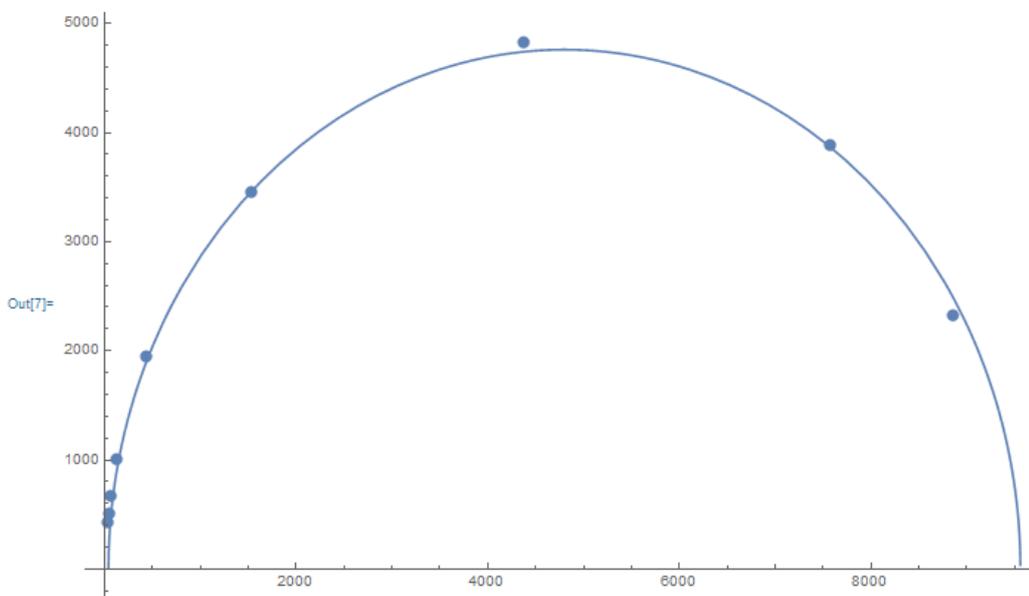
```

Приложение 8. Пример построения диаграммы Коул-Кола для случая реального металла, и аппроксимация ее полуокружностью

```

In[1]:= nk = Import["Ag.txt", "Table"]; (*импорт данных*)
          импорт
(*расчет комплексной диэлектрической проницаемости*)
ε = Table[{nk[[i]][[1]], (nk[[i]][[2]])^2 - (nk[[i]][[3]])^2 + 2 i × nk[[i]][[2]] × nk[[i]][[3]]}, {i, 1, 38}];
          таблица значений
(*расчет комплексной проводимости*)
σ = Table[{nk[[i]][[1]],  $\frac{\text{Re}\left[\frac{3 \cdot 10^8}{\text{nk}[[i]][[1]] \times 10^{-4}} \times \frac{e^{i((i)[[2])}-1}}{i}\right]}{10^{12}}$ ,  $\frac{\text{Im}\left[\frac{3 \cdot 10^8}{\text{nk}[[i]][[1]] \times 10^{-4}} \times \frac{e^{i((i)[[2])}-1}}{i}\right]}{10^{12}}$ }, {i, 1, 38}];
          таблица значений
(*построении диаграммы Коул-Кола и аппроксимация его полуокружностью*)
σ1 = Table[{σ[[i]][[2]], σ[[i]][[3]]}, {i, 30, 38}];
          таблица значений
r = 4760; x0 = 4800; y0 = 0;
y[x_] := Sqrt[r^2 - (x - x0)^2 + y0^2];
Show[Plot[y[x], {x, 0, 10000}, PlotRange -> All], ListPlot[σ1, PlotRange -> All]]
          график функции          отображае...   всё   диаграмма ра...   отображае...   всё
(*табличный вывод данных*)
TraditionalForm[σ]
          традиционная форма

```



```

Out[8]//TraditionalForm=

$$\begin{pmatrix} 0.1033 & 54.8245 & -36.0434 \\ 0.1127 & 45.4863 & -28.7813 \\ 0.124 & 30.4032 & -20.0178 \end{pmatrix}$$


```

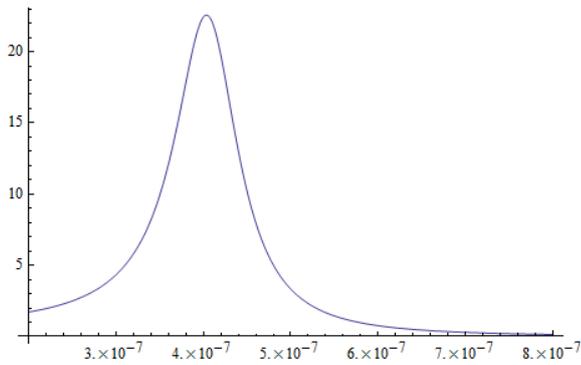
Приложение 9. Расчет спектральной зависимости усиления поля внутри плазмонной наночастицы

```

εD = 1; (*диэлектрическая проницаемость окружающей среды*)
λp =  $\frac{2 \times \pi \times 3 \times 10^8}{8 \times 10^{15}}$ ; (*параметры материала частицы*)

λγ =  $\frac{2 \times \pi \times 3 \times 10^8}{1 \times 10^{15}}$ ;
εinf = 12;
ε[λ_] := εinf -  $\frac{1}{\lambda p^2 \times \left(\frac{1}{\lambda^2} + \frac{1}{\lambda \gamma^2}\right)} + i \times \frac{\lambda}{\lambda \gamma \times \lambda p^2 \times \left(\frac{1}{\lambda^2} + \frac{1}{\lambda \gamma^2}\right)}$ ; (*задание диэлектрической проницаемости*)
kin[λ_] := Abs[ $\frac{3 \times \epsilon 0}{\epsilon[\lambda] + 2 \epsilon 0}$ ]2; (*расчет спектральной зависимости усиления поля внутри частицы*)
Plot[kin[λ], {λ, 200 × 10-9, 800 × 10-9}] (*графический вывод данных*)
kinx = Table[{109 × x, kin[x]}, {x, 200. × 10-9, 700. × 10-9, 5. × 10-9}; (*табличный вывод данных*)
TraditionalForm[kinx]

```



200.	1.71807
205.	1.77252
210.	1.83092
215.	1.89365
220.	1.9611
225.	2.03372

Приложение 10. Расчет спектральной зависимости усиления поля в точке вне плазмонной наночастицы

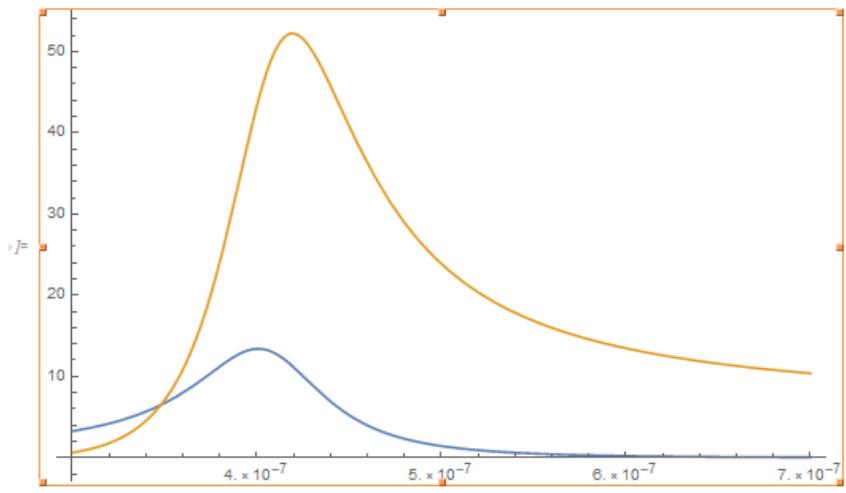
```

J:= einf = 1; (*диэлектрические свойства металла*)
λp =  $\frac{2 \times \pi \times 3 \times 10^8}{8 \times 10^{15}}$ ;
λγ =  $\frac{2 \times \pi \times 3 \times 10^8}{1 \times 10^{15}}$ ;
ε[λ_] := einf -  $\frac{1}{\lambda p^2 \times \left(\frac{1}{\lambda^2} + \frac{1}{\lambda \gamma^2}\right)} + i \times \frac{\lambda}{\lambda \gamma \times \lambda p^2 \times \left(\frac{1}{\lambda^2} + \frac{1}{\lambda \gamma^2}\right)}$ ;
a = 20 × 10-9; (*радиус наночастицы*)
xA = 0 × 10-9; xC = 22 × 10-9; (*координаты точки наблюдения*)
yA = 22 × 10-9; yC = 0 × 10-9;
koutA[λ_] :=  $\left( \text{Abs} \left[ 1 + 2 \times \left( \frac{a}{yA} \right)^3 \times \frac{\epsilon[\lambda] - 1}{\epsilon[\lambda] + 2} \right] \right)^2$ ; (*расчет интенсивности усиленного поля в точках A и C*)
koutC[λ_] :=  $\left( \text{Abs} \left[ 1 - \left( \frac{a}{xC} \right)^3 \times \frac{\epsilon[\lambda] - 1}{\epsilon[\lambda] + 2} \right] \right)^2$ ;

Plot[{koutC[λ], koutA[λ]}, {λ, 300 × 10-9, 700 × 10-9}, PlotRange → All]
(*график функции*)
koutTab = Table[{109 × x, koutA[x], koutC[x]}, {x, 200. × 10-9, 900. × 10-9, 5. × 10-9};
(*таблица значений*)

TraditionalForm[koutTab]
(*традиционная форма*)

```



TraditionalForm=

200.	0.289528	1.52119
205.	0.258624	1.55956
210.	0.228246	1.60059
215.	0.198679	1.64451
220.	0.17026	1.69156
225.	0.143386	1.74204
230.	0.118531	1.79626

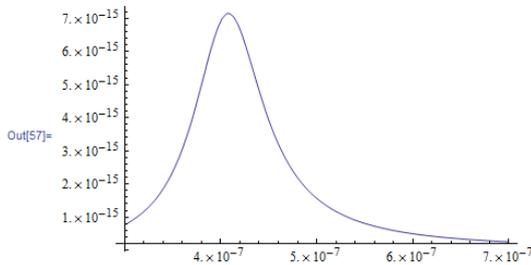
Приложение 11. Расчет спектров сечений поглощения, рассеяния и экстинкции сферической частицы из Друдэ-материала с помощью Wolfram Mathematica

```

In[55]:= εD = 12; (*диэлектрическая проницаемость матрицы*)
a = 20 × 10-9; (*радиус наночастицы*)
λp =  $\frac{2 \times \pi \times 3 \times 10^8}{8 \times 10^{15}}$ ; (*задание параметров Друдэ-материала*)

λγ =  $\frac{2 \times \pi \times 3 \times 10^8}{1 \times 10^{15}}$ ;
εinf = 12;
ε[λ_] := εinf -  $\frac{1}{\lambda p^2 \times \left(\frac{1}{\lambda^2} + \frac{1}{\lambda \gamma^2}\right)} + i \times \frac{\lambda}{\lambda \gamma \times \lambda p^2 \times \left(\frac{1}{\lambda^2} + \frac{1}{\lambda \gamma^2}\right)}$ ; (*дисперсия диэлектрической проницаемости*)
α[λ_] := a3 ×  $\frac{\epsilon[\lambda] - \epsilon D}{\epsilon[\lambda] + 2 \times \epsilon D}$ ; (*расчет поляризуемости наночастицы*)
σext[λ_] :=  $\frac{8 \times \pi^2 \times \sqrt{\epsilon D}}{\lambda} \times \text{Im}[\alpha[\lambda]]$ ; (*расчет сечения экстинкции наночастицы*)
Plot[σext[λ], {λ, 300 × 10-9, 0.7 × 10-6}, PlotRange → All] (*построение сечения экстинкции наночастицы*)
σextx = Table[{109 × x, 1016 × σext[x]}, {x, 300. × 10-9, 800. × 10-9, 5. × 10-9}] (*вывод данных в виде таблицы*)
TraditionalForm[σextx]

```



```

Out[57]=
Out[58]/TraditionalForm=


|      |         |
|------|---------|
| 300. | 765.416 |
| 305. | 846.665 |
| 310. | 938.753 |
| 315. | 1043.46 |
| 320. | 1162.88 |
| 325. | 1299.5  |
| 330. | 1456.24 |
| 335. | 1636.51 |
| 340. | 1844.24 |


```

Приложение 12. Расчет спектров сечений поглощения, рассеяния и экстинкции сферической серебряной частицы с диэлектрической проницаемостью, заданной в табличном виде помощью Wolfram Mathematica

```

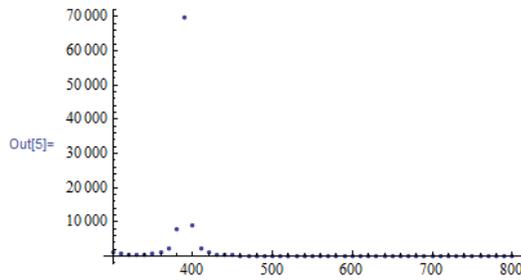
In[1]:= nk = Import["dataAg.txt", "Table"]; (*экспорт данных*)

(*расчет диэлектрической проницаемости *)
ε = Table[(nk[[i]][[2]])^2 - (nk[[i]][[3]])^2 + 2 * i * (nk[[i]][[2]]) * (nk[[i]][[3]]), {i, 1, 51}]

a = 20. * 10^-9; (*радиус наночастицы*)
eD = 2; (*диэлектрическая проницаемость окружающей среды*)
α = Table[(ε[[i]] - eD) / (ε[[i]] + 2 * eD) * a^3, {i, 1, 51}]; (*расчет поляризуемости*)

(*расчет сечения экстинкции*)
σex = Table[{10^3 * nk[[i]][[1]], 10^18 * (8 * 3.14^2 * Sqrt[eD]) / (nk[[i]][[1]] * 10^-6) * Im[α[[i]]]}, {i, 1, 51}];
ListPlot[σex, PlotRange -> All] (*графический вывод данных*)
TraditionalForm[σex] (*вывод данных в виде таблицы*)

```



frame axes image size plot style... more...

```

Out[5]=
51//TraditionalForm=
{300. 1313.66
 310. 792.715
 320. 447.569
 330. 320.623
 340. 405.895
 350. 607.172
 360. 1039.01
 370. 2287.65
 380. 7921.83
 390. 69916.5}

```

Приложение 13. Расчет спектров сечения экстинкции эллипсоидальной частицы из Друде-материала с помощью Wolfram Mathematica

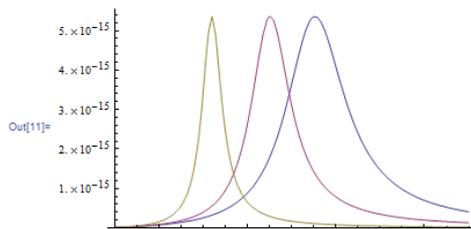
```

In[1]:= εD = 1; (*диэлектрическая проницаемость окружающей среды*)
a = 30 × 10-9; (*размеры полуосей*)
b = 20 × 10-9;
c = 10 × 10-9;
La = 2 / 11; (*факторы деполяризации*)
Lb = 3 / 11;
Lc = 6 / 11;
λp =  $\frac{2 \times \pi \times 3 \times 10^8}{0.8 \times 10^{16}}$ ; (*параметры друдэ-материала*)

λγ =  $\frac{2 \times \pi \times 3 \times 10^8}{1 \times 10^{15}}$ ;
εinf = 12;
ε[λ_] := εinf -  $\frac{1}{\lambda p^2 \times \left(\frac{1}{\lambda^2} + \frac{1}{\lambda \gamma^2}\right)} + i \times \frac{\lambda}{\lambda \gamma \times \lambda p^2 \times \left(\frac{1}{\lambda^2} + \frac{1}{\lambda \gamma^2}\right)}$ ; (*задание диэлектрической проницаемости*)
αa[λ_] := a × b × c ×  $\frac{(\epsilon[\lambda] / \epsilon D) - 1}{3 (1 + ((\epsilon[\lambda] / \epsilon D) - 1) \times La)}$ ; (*расчет поляризуемости вдоль каждой оси*)
αb[λ_] := a × b × c ×  $\frac{(\epsilon[\lambda] / \epsilon D) - 1}{3 (1 + ((\epsilon[\lambda] / \epsilon D) - 1) \times Lb)}$ ;
αc[λ_] := a × b × c ×  $\frac{(\epsilon[\lambda] / \epsilon D) - 1}{3 (1 + ((\epsilon[\lambda] / \epsilon D) - 1) \times Lc)}$ ;
σaext[λ_] :=  $\frac{8 \times \pi^2 \times \lambda \sqrt{\epsilon D}}{\lambda} \times \text{Im}[\alpha a[\lambda]]$ ; (*расчет сечений экстинкции для каждой моды*)
σbext[λ_] :=  $\frac{8 \times \pi^2 \times \lambda \sqrt{\epsilon D}}{\lambda} \times \text{Im}[\alpha b[\lambda]]$ ;
σcext[λ_] :=  $\frac{8 \times \pi^2 \times \lambda \sqrt{\epsilon D}}{\lambda} \times \text{Im}[\alpha c[\lambda]]$ ;

Plot[{σaext[λ], σbext[λ], σcext[λ]}, {λ, 100 × 10-9, 0.9 × 10-6}, PlotRange → All] (*графическое представление данных*)
σaextx = Table[{109 × x, 1018 × σaext[x]}, {x, 200. × 10-9, 900. × 10-9, 5. × 10-9}; TraditionalForm[σaextx] (*табличное представление*)
σbextx = Table[{109 × x, 1018 × σbext[x]}, {x, 200. × 10-9, 900. × 10-9, 5. × 10-9}; TraditionalForm[σbextx]
σcextx = Table[{109 × x, 1018 × σcext[x]}, {x, 200. × 10-9, 900. × 10-9, 5. × 10-9}; TraditionalForm[σcextx]

```



Приложение 14. Расчет спектров экстинкции неупорядоченного ансамбля сферических частиц из Друде-материала с помощью Wolfram Mathematica

```

in[]:= eD = 1; (*диэлектрическая проницаемость окружающей среды*)
V = 6 × 10-24; (*объем наночастицы*)
exc = 0.9; (*эксцентриситет наночастицы*)

La =  $\frac{1}{1 + \frac{2}{\sqrt{1 - \text{exc}^2}}}$ ; (*расчет факторов деполаризации*)

Lb =  $\frac{1}{\sqrt{1 - \text{exc}^2} + 2}$ ;

λp =  $\frac{2 \times \pi \times 3 \times 10^8}{0.8 \times 10^{16}}$ ; (*свойства друдэ-материала*)

λγ =  $\frac{2 \times \pi \times 3 \times 10^8}{1 \times 10^{15}}$ ;

einf = 12;

ε[λ_] := einf -  $\frac{1}{\lambda p^2 \times \left(\frac{1}{\lambda^2} + \frac{1}{\lambda^2}\right)} + i \times \frac{\lambda}{\lambda \gamma \times \lambda p^2 \times \left(\frac{1}{\lambda^2} + \frac{1}{\lambda^2}\right)}$ ; (*задание дисперсии диэлектрической проницаемости*)

αa[λ_] :=  $\frac{V}{4 \times \pi} \times \frac{(\epsilon[\lambda] / eD) - 1}{3 (1 + ((\epsilon[\lambda] / eD) - 1) \times La)}$ ; (*расчет поляризуемости*)

αb[λ_] :=  $\frac{V}{4 \times \pi} \times \frac{(\epsilon[\lambda] / eD) - 1}{3 (1 + ((\epsilon[\lambda] / eD) - 1) \times Lb)}$ ;

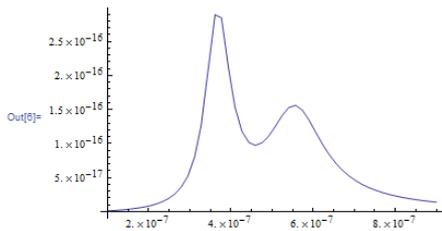
α[λ_] :=  $\frac{\alpha a[\lambda] + 2 \alpha b[\lambda]}{3}$ ;

σaext[λ_] :=  $\frac{8 \times \pi^2 \times \sqrt{eD}}{\lambda} \times \text{Im}[\alpha[\lambda]]$ ; (*расчет сечения экстинкции*)

Plot[σaext[λ], {λ, 100 × 10-9, 0.9 × 10-6}, PlotRange → All] (*графическое представление данных*)

σaextx = Table[{109 × x, 1018 × σaext[x]}, {x, 200. × 10-9, 900. × 10-9, 5. × 10-9}; TraditionalForm[σaextx] (*табличное представление данных*)

```



```

Out[7]/TraditionalForm=

$$\begin{pmatrix} 200. & 8.39325 \\ 205. & 9.12564 \\ 210. & 9.92621 \end{pmatrix}$$


```

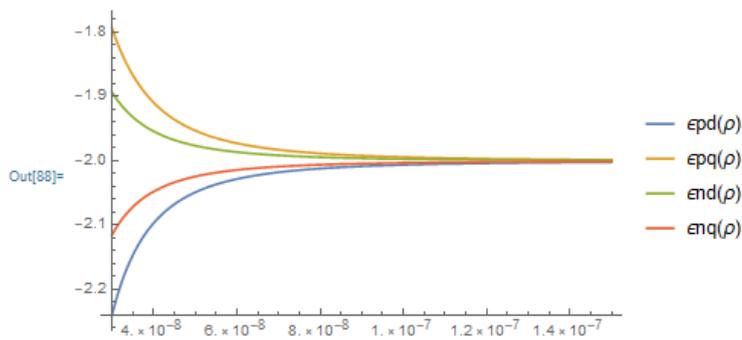
Приложение 15. Расчет зависимостей резонансных диэлектрических проницаемостей от расстояния между взаимодействующими наночастицами

```
In[82]:= a = 10 × 10-9; (*размер наночастиц*)
εD = 1; (*диэлектрическая проницаемость окружающей среды*)
(*расчет резонансных диэлектрических проницаемостей*)

εpd[ρ_] :=  $\frac{2 \epsilon D (a^3 + \rho^3)}{2 a^3 - \rho^3}$ ;
εpq[ρ_] :=  $\frac{2 \epsilon D (a^3 - \rho^3)}{2 a^3 + \rho^3}$ ;
end[ρ_] :=  $\frac{\epsilon D (a^3 - 2 \rho^3)}{a^3 + \rho^3}$ ;
enq[ρ_] :=  $\frac{\epsilon D (a^3 + 2 \rho^3)}{a^3 - \rho^3}$ ;

(*графический вывод данных*)
Plot[{εpd[ρ], εpq[ρ], end[ρ], enq[ρ]}, {ρ, 30 × 10-9, 150 × 10-9}, PlotRange → All, PlotLegends → "Expressions"]
|график функции |отображае... |все |легенды графика
```

```
(*табличный вывод данных*)
Table[{109 × ρ, εpd[ρ], εpq[ρ], end[ρ], enq[ρ]}, {ρ, 30. × 10-9, 150. × 10-9, 2.5 × 10-9}] // TraditionalForm
|таблица значений |традиционная форма
```



```
Out[89]/TraditionalForm=


|      |          |          |          |          |
|------|----------|----------|----------|----------|
| 30.  | -2.24    | -1.7931  | -1.89286 | -2.11538 |
| 32.5 | -2.1856  | -1.83484 | -1.91508 | -2.09001 |
| 35.  | -2.14679 | -1.8663  | -1.93162 | -2.07164 |
| 37.5 | -2.11826 | -1.89038 | -1.94417 | -2.05799 |
| 40.  | -2.09677 | -1.90909 | -1.95385 | -2.04762 |
| 42.5 | -2.08025 | -1.92382 | -1.96142 | -2.0396  |
| 45.  | -2.06732 | -1.93557 | -1.96744 | -2.03329 |
| 47.5 | -2.05705 | -1.94504 | -1.97227 | -2.02826 |
| 50.  | -2.04878 | -1.95276 | -1.97619 | -2.02419 |


```

Приложение 16. Пример расчета зависимостей резонансных частот и длин волн в системе из двух взаимодействующих наночастиц

```

In[173]:= a = 10 × 10-9; (*размер наночастиц*)
εD = 1; (*диэлектрическая проницаемость окружающей среды*)
ωp1 = 5 × 1015; (*свойства материала наночастиц*)
γ = 2 × 1013;
εinf = 1;
(*расчет резонансных диэлектрических проницаемостей*)
εpd[ρ_] :=  $\frac{2 \epsilon D (a^3 + \rho^3)}{2 a^3 - \rho^3}$ ; εpq[ρ_] :=  $\frac{2 \epsilon D (a^3 - \rho^3)}{2 a^3 + \rho^3}$ ; εnd[ρ_] :=  $\frac{\epsilon D (a^3 - 2 \rho^3)}{a^3 + \rho^3}$ ; εnq[ρ_] :=  $\frac{\epsilon D (a^3 + 2 \rho^3)}{a^3 - \rho^3}$ ;

(*расчет резонансных частот*)
ωpd[ρ_] :=  $\sqrt{\frac{\omega p1^2}{\epsilon inf - \epsilon pd[\rho]} - \gamma^2}$ ; ωpq[ρ_] :=  $\sqrt{\frac{\omega p1^2}{\epsilon inf - \epsilon pq[\rho]} - \gamma^2}$ ;
ωnd[ρ_] :=  $\sqrt{\frac{\omega p1^2}{\epsilon inf - \epsilon nd[\rho]} - \gamma^2}$ ; ωnq[ρ_] :=  $\sqrt{\frac{\omega p1^2}{\epsilon inf - \epsilon nq[\rho]} - \gamma^2}$ ;

(*расчет резонансных длин волн*)
λpd[ρ_] :=  $\frac{2 \times \pi \times 3 \times 10^8}{\omega pd[\rho]} \times 10^9$ ; λpq[ρ_] :=  $\frac{2 \times \pi \times 3 \times 10^8}{\omega pq[\rho]} \times 10^9$ ;
λnd[ρ_] :=  $\frac{2 \times \pi \times 3 \times 10^8}{\omega nd[\rho]} \times 10^9$ ; λnq[ρ_] :=  $\frac{2 \times \pi \times 3 \times 10^8}{\omega nq[\rho]} \times 10^9$ ;

(*вывод данных*)
Plot[{ωpd[ρ], ωpq[ρ], ωnd[ρ], ωnq[ρ]}, {ρ, 30 × 10-9, 150 × 10-9}, PlotRange → All, PlotLegends → "Expressions"]
[график функции] [отображае... [все [легенды графика]

Plot[{λpd[ρ], λpq[ρ], λnd[ρ], λnq[ρ]}, {ρ, 30 × 10-9, 150 × 10-9}, PlotRange → All, PlotLegends → "Expressions"]
[график функции] [отображае... [все [легенды графика]

Table[{109 × ρ,  $\frac{\omega pd[\rho]}{10^{15}}$ ,  $\frac{\omega pq[\rho]}{10^{15}}$ ,  $\frac{\omega nd[\rho]}{10^{15}}$ ,  $\frac{\omega nq[\rho]}{10^{15}}$ }, {ρ, 30. × 10-9, 150. × 10-9, 2.5 × 10-9}] // TraditionalForm
[таблица значений] [традиционная форма]

Table[{109 × ρ, λpd[ρ], λpq[ρ], λnd[ρ], λnq[ρ]}, {ρ, 30. × 10-9, 150. × 10-9, 2.5 × 10-9}] // TraditionalForm
[таблица значений] [традиционная форма]

```

Приложение 17. Расчет спектров экстинкции системы из двух одинаковых взаимодействующих плазмонных наночастиц

```

= ε0 = 12; (*диэлектрическая проницаемость матрицы*)
(*Свойства материала и размер наночастиц*)
ωp = 5 × 1015; λp =  $\frac{2 \times \pi \times 3 \times 10^8}{\omega p}$ ; γ0 = 2 × 1013; λγ =  $\frac{2 \times \pi \times 3 \times 10^8}{\gamma 0}$ ;

εinf = 1;
a = 10 × 10-9;
ρ = 40 × 10-9;

ε[λ_] := εinf -  $\frac{1}{\lambda p^2 \times \left(\frac{1}{\lambda^2} + \frac{1}{\lambda \gamma^2}\right)} + i \times \frac{\lambda}{\lambda \gamma \times \lambda p^2 \times \left(\frac{1}{\lambda^2} + \frac{1}{\lambda \gamma^2}\right)}$ ; (*дисперсия диэлектрической проницаемости*)

α[λ_] := a3 ×  $\frac{\epsilon[\lambda] - \epsilon 0}{\epsilon[\lambda] + 2 \times \epsilon 0}$ ; (*расчет поляризуемости наночастицы*)

ap[λ_] :=  $\frac{2 \times \alpha[\lambda]}{1 - \frac{2 \times \alpha[\lambda]}{\rho^3}}$ ; an[λ_] :=  $\frac{2 \times \alpha[\lambda]}{1 + \frac{\alpha[\lambda]}{\rho^3}}$ ;

(*расчет сечения экстинкции системы наночастицы*)

σextp[λ_] :=  $\frac{8 \times \pi^2 \times \sqrt{\epsilon 0}}{\lambda} \times \text{Im}[ap[\lambda]]$ ; σextn[λ_] :=  $\frac{8 \times \pi^2 \times \sqrt{\epsilon 0}}{\lambda} \times \text{Im}[an[\lambda]]$ ;

Plot[{σextp[λ], σextn[λ]}, {λ, 600 × 10-9, 0.75 × 10-6}, PlotRange → All] (*построение сечения экстинкции наночастицы*)
|график функции |отображае... |все

Table[{ $\frac{\lambda}{10^{-9}}$ ,  $\frac{\sigma \text{extp}[\lambda]}{10^{-15}}$ ,  $\frac{\sigma \text{extn}[\lambda]}{10^{-15}}$ }, {λ, 620. × 10-9, 0.690 × 10-6, 1. × 10-9}] // TraditionalForm
|традиционная форма

```

Приложение 18. Пример расчета спектров экстинкции системы, состоящей из двух наночастиц для случая реальных металлов

```
(*ввод параметров*)
ε0 = 12; a = 10×10-9; ρ = 25×10-9;

(*импорт оптических констант*)
nk = Import["Ag1.txt", "Table"];
|импорт

(*расчет диэлектрической проницаемости и поляризуемости наночастиц*)
ε = Table[{10-6 × nk[[i]][[1]], (nk[[i]][[2]])2 - (nk[[i]][[3]])2 + 2 i (nk[[i]][[2]]) × (nk[[i]][[3]])}, {i, 1, 201}];
|таблица значений

α = Table[ $\frac{\epsilon[[i]][[2]] - \epsilon_0}{\epsilon[[i]][[2]] + 2 \times \epsilon_0} \times a^3$ , {i, 1, 201}]; ap = Table[ $\frac{2 \times \alpha[[i]]}{1 + \frac{2 \times \alpha[[i]]}{\rho^3}}$ , {i, 1, 201}]; an = Table[ $\frac{2 \times \alpha[[i]]}{1 + \frac{2 \times \alpha[[i]]}{\rho^3}}$ , {i, 1, 201}];
|таблица значений |таблица значений |таблица значений

(*расчет спектров сечения экстинкции*)

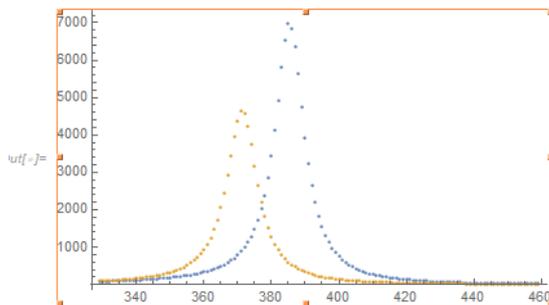
σрех = Table[{103 × nk[[i]][[1]], 1018 ×  $\frac{8 \times 3.14^2 \times \sqrt{\epsilon_0}}{nk[[i]][[1]] \times 10^{-6}}$  × Im[ap[[i]]]}, {i, 30, 160}];
|таблица значений |минимая часть

σпех = Table[{103 × nk[[i]][[1]], 1018 ×  $\frac{8 \times 3.14^2 \times \sqrt{\epsilon_0}}{nk[[i]][[1]] \times 10^{-6}}$  × Im[an[[i]]]}, {i, 30, 160}];
|таблица значений |минимая часть

(*вывод данных*)
ListPlot[{σрех, σпех}, PlotRange → All] (*вывод данных*)
|диаграмма разброса данных |отображае... |все

TraditionalForm[σрех]
|традиционная форма

TraditionalForm[σпех]
|традиционная форма
```



```
]/TraditionalForm=
|
| (329. 80.7738)
| (330. 83.5814)
|
```

Приложение 19. Расчет спектров сечения экстинкции серебряных наночастиц с учетом эффекта деполяризации и радиационных потерь

```

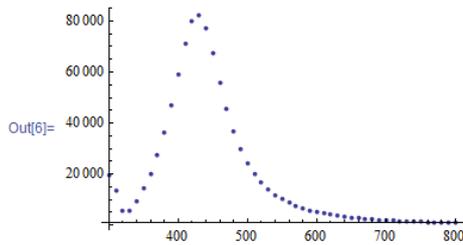
In[1]= nk = Import["dataAg.txt", "Table"]; (*импорт данных*)
eD = 1; (*диэлектрическая проницаемость окружающей среды*)
a = 50. * 10-9; (*радиус наночастицы*)

(*расчет дисперсии диэлектрической проницаемости*)
ε = Table[(nk[[i]][[2]])2 - (nk[[i]][[3]])2 + 2 * i * (nk[[i]][[2]]) * (nk[[i]][[3]]), {i, 1, 51}];

(*расчет поляризуемости*)
q = Table[ $\frac{2 \times \pi}{10^{-6} \times nk[[i]][[1]]} \times \sqrt{eD} \times a$ , {i, 1, 51}];
α1 = Table[ $\frac{a^3 \times (\epsilon[[i]] - eD)}{(\epsilon[[i]] + 2 \times eD) - (\epsilon[[i]] - eD) \times (q[[i]])^2 - \frac{2}{3} \times i \times (\epsilon[[i]] - eD) \times (q[[i]])^3}$ , {i, 1, 51}];

(*расчет сечения экстинкции*)
σex1 = Table[{103 * nk[[i]][[1]], 1018 *  $\frac{8 \times 3.14^2 \times \sqrt{eD}}{nk[[i]][[1]] \times 10^{-6}} \times \text{Im}[\alpha1[[i]]]$ }, {i, 1, 51}];
ListPlot[σex1, PlotRange -> All] (*графическое и табличное представление данных*)
TraditionalForm[σex1]

```



Out[7]/TraditionalForm=

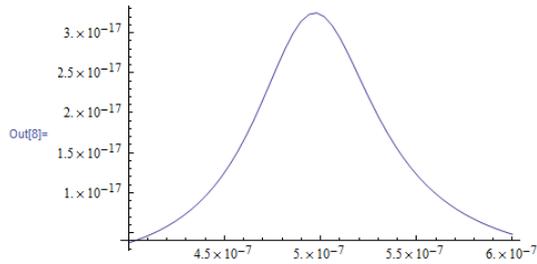
300.	19802.9
310.	13416.6
320.	5685.4
330.	5539.31

Приложение 20. Расчет спектров сечения поглощения наночастицы с учетом рассеяния электронов на ее поверхности

```

In[1]:= εD = 2.22; (*диэлектрическая проницаемость матрицы*)
ωp = 14.9 × 1015; (*Свойства материала и размер наночастицы*)
γ0 = 5.5 × 1013;
vF = 1.36 × 106;
A = 1;
a = 2.5 × 10-9;
λp =  $\frac{2 \times \pi \times 3 \times 10^8}{\omega p}$ ;
λγ =  $\frac{2 \times \pi \times 3 \times 10^8}{\gamma_0 + A \times \frac{vF}{a}}$ ;
εinf = 2.42;
ε[λ_] := εinf -  $\frac{1}{\lambda p^2 \times \left(\frac{1}{\lambda^2} + \frac{1}{\lambda \gamma^2}\right)} + i \times \frac{\lambda}{\lambda \gamma \times \lambda p^2 \times \left(\frac{1}{\lambda^2} + \frac{1}{\lambda \gamma^2}\right)}$ ; (*дисперсия диэлектрической проницаемости*)
α[λ_] := a3 ×  $\frac{\epsilon[\lambda] - \epsilon D}{\epsilon[\lambda] + 2 \times \epsilon D}$ ; (*расчет поляризуемости наночастицы*)
σext[λ_] :=  $\frac{8 \times \pi^2 \times \lambda \sqrt{\epsilon D}}{\lambda} \times \text{Im}[\alpha[\lambda]]$ ; (*расчет сечения экстинкции наночастицы*)
Plot[σext[λ], {λ, 400 × 10-9, 0.6 × 10-6}, PlotRange → All] (*построение сечения экстинкции наночастицы*)
σextx = Table[{109 × x, 1018 × σext[x]}, {x, 400. × 10-9, 600. × 10-9, 2. × 10-9}; (*вывод данных в виде таблицы*)
TraditionalForm[σextx]

```



```

Out[9]/TraditionalForm=

$$\begin{pmatrix} 400. & 3.74043 \\ 402. & 3.89935 \\ 404. & 4.06707 \\ 406. & 4.2442 \end{pmatrix}$$


```

Приложение 21. Пример расчета теоретической зависимости разности спектров до и после воздействия излучения и ее сравнение с экспериментальными данными

```

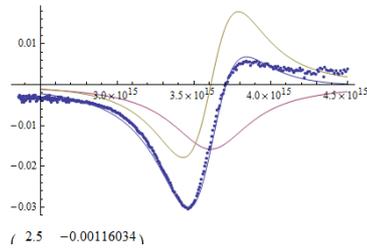
Delta = Import["lasertreat11.txt", "Table"]; (*импорт данных*)
DeltaF = Table[{Delta[[i]][[1]], Delta[[i]][[2]]}, {i, 120, 500}]; (*пересчет в зависимость от частоты*)
A = 0.0158; (*ввод параметров*)
B = 0.055;
Omega = 3.61 * 1015;
gamma = 6.25 * 1014;

model[omega_] := -A * (gamma/2)^2 / ((omega - Omega)^2 + (gamma/2)^2) + B * (omega - Omega) * (gamma/2)^3 / ((omega - Omega)^2 + (gamma/2)^2)^2; (*задание модели*)

(*графический вывод данных*)
Show[Plot[{model[omega], -A * (gamma/2)^2 / ((omega - Omega)^2 + (gamma/2)^2), B * (omega - Omega) * (gamma/2)^3 / ((omega - Omega)^2 + (gamma/2)^2)^2}, {omega, 2.5 * 1015, 4.5 * 1015}, PlotRange -> All], ListPlot[DeltaF, PlotRange -> All]]

(*вывод данных в виде таблицы*)
FirstX = Table[{x * 10-15, -A * (gamma/2)^2 / ((x - Omega)^2 + (gamma/2)^2)}, {x, 2.5 * 1015, 4.5 * 1015, 0.025 * 1015}; TraditionalForm[FirstX]
SecondX = Table[{x * 10-15, B * (x - Omega) * (gamma/2)^3 / ((x - Omega)^2 + (gamma/2)^2)^2}, {x, 2.5 * 1015, 4.5 * 1015, 0.025 * 1015}; TraditionalForm[SecondX]
ModelX = Table[{x * 10-15, model[x]}, {x, 2.5 * 1015, 4.2 * 1015, 0.025 * 1015}; TraditionalForm[ModelX]
DataX = Table[{(2. * Pi * 3 * 102 / Delta[[i]][[1]]), Delta[[i]][[2]]}, {i, 150, 400}]; TraditionalForm[DataX]

```



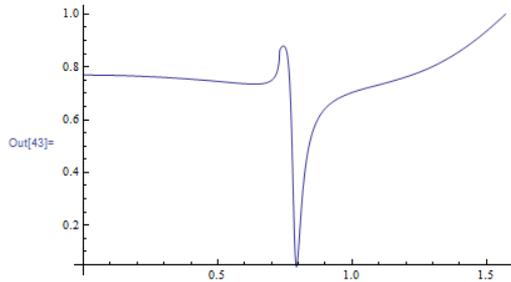
Приложение 22. Расчета угловой зависимости отражения от трехслойной структуры, содержащей золотую пленку. Расчет выполнен с помощью Wolfram Mathematica

```

ε1 = 1.52; (*диэлектрическая проницаемость призмы*)
ε3 = 12; (*диэлектрическая проницаемость среды на внешней границе металлической пленки*)
λ = 580 × 10-9; (*длина волны падающего излучения*)
Ree = -8.49; (*параметры диэлектрической проницаемости металлического покрытия на заданной длине волны*)
Imε = 1.6;
ε2 := Ree + i × Imε;
d = 50 × 10-9; (*толщина металлического слоя*)

k1[θ_] :=  $\frac{2\pi}{\lambda} \sqrt{\epsilon_1 \cos^2[\theta]}$ ; (*расчет проекций волновых векторов на нормаль к межфазным границам в каждой среде*)
k2[θ_] :=  $\frac{2\pi}{\lambda} \sqrt{\epsilon_2 - \epsilon_1 \times (\sin[\theta])^2}$ ;
k3[θ_] :=  $\frac{2\pi}{\lambda} \sqrt{\epsilon_3 - \epsilon_1 \times (\sin[\theta])^2}$ ;
rp12[θ_] :=  $\frac{\epsilon_2 \times k_1[\theta] - \epsilon_1 \times k_2[\theta]}{\epsilon_2 \times k_1[\theta] + \epsilon_1 \times k_2[\theta]}$ ; (*расчет коэффициентов отражения на каждой межфазной границе *)
rp23[θ_] :=  $\frac{\epsilon_3 \times k_2[\theta] - \epsilon_2 \times k_3[\theta]}{\epsilon_3 \times k_2[\theta] + \epsilon_2 \times k_3[\theta]}$ ;
rs12[θ_] :=  $\frac{k_1[\theta] - k_2[\theta]}{k_1[\theta] + k_2[\theta]}$ ;
rs23[θ_] :=  $\frac{k_2[\theta] - k_3[\theta]}{k_2[\theta] + k_3[\theta]}$ ;
ex[θ_] := e2i × k2[θ] × d;
Rp[θ_] :=  $\left( \text{Abs} \left[ \frac{rp12[\theta] + rp23[\theta] \times ex[\theta]}{1 + rp12[\theta] \times rp23[\theta] \times ex[\theta]} \right] \right)^2$ ; (*расчет коэффициентов отражения для s и p поляризаций*)
Rs[θ_] :=  $\left( \text{Abs} \left[ \frac{rs12[\theta] + rs23[\theta] \times ex[\theta]}{1 + rs12[\theta] \times rs23[\theta] \times ex[\theta]} \right] \right)^2$ ;
Plot[Rp[θ], {θ, 0, Pi/2}, PlotRange → All] (*графическое представление расчетов*)
Plot[Rs[θ], {θ, 0, Pi/2}, PlotRange → All]
Rsx = Table[{x, Rs[x]}, {x, 0, Pi/2, 0.01}]; TraditionalForm[Rsx] (*табличное представление данных*)
Rpx = Table[{x, Rp[x]}, {x, 0, Pi/2, 0.01}];
TraditionalForm[Rpx]

```



СПИСОК ИСТОЧНИКОВ

1. <http://refractiveindex.info>
2. P. B. Johnson and R. W. Christy. Optical constants of the noble metals // Phys. Rev. B – 1972. – V. 6. – P. 4370-4379.
3. K. M. McPeak, et al. Plasmonic films can easily be better: Rules and recipes // ACS Photonics – 2015. – V. 2. – P. 326-333.
4. Y. Jiang, et al. Realistic silver optical constants for plasmonics // Sci. Rep. – 2016, – V. 6, P. 30605
5. R. L. Olmon, et al. Optical dielectric function of gold // Phys. Rev. B – 2018, – V. 86, – P. 235147
6. M. A. Ordal, et al. Optical properties of fourteen metals in the infrared and far infrared: Al, Co, Cu, Au, Fe, Pb, Mo, Ni, Pd, Pt, Ag, Ti, V, and W // Appl. Opt. – 1985 – V. 24, – P. 4493-4499
7. Ashcroft N. W. et al. Solid state physics [by] Neil W. Ashcroft [and] N. David Mermin. – 1976.
8. <http://people.ee.duke.edu/~drsmith/plasmonics/enhancement.htm>
9. <https://physics.itmo.ru/ru/mie>
10. <https://nanocomposix.com/pages/mie-theory-calculator>
11. <https://saviot.cnrs.fr/miecoat/index.en.html>
12. Климов В. В. Наноплазмоника. – Общество с ограниченной ответственностью Издательская фирма "Физико-математическая литература", 2009. – С. 1-480.
13. Vartanyan T. et al. Theory of spectral hole burning for the study of ultrafast electron dynamics in metal nanoparticles // Applied Physics B. – 2001. – T. 73. – №. 4. – С. 391-399.

Щербинин Дмитрий Павлович
Вартамян Тигран Арменакович

**Практикум по моделированию оптических свойств
металлических наноструктур**

Практикум

В авторской редакции

Редакционно-издательский отдел Университета ИТМО

Зав. РИО

Н.Ф. Гусарова

Подписано к печати

Заказ №

Тираж

Отпечатано на ризографе

Редакционно-издательский отдел
Университета ИТМО
197101, Санкт-Петербург, Кронверкский пр., 49, литер А