

МОСКОВСКИЙ ГОСУДАРСТВЕННЫЙ УНИВЕРСИТЕТ  
имени М. В. ЛОМОНОСОВА

*На правах рукописи*

Лопушенко Иван Владимирович

**Разработка и реализация новых математических моделей  
нанооптики и плазмоники на основе метода дискретных  
источников**

05.13.18 —

«Математическое моделирование, численные методы и комплексы программ»

Диссертация на соискание учёной степени  
кандидата физико-математических наук

Научный руководитель:  
доктор физико-математических наук, профессор  
Свешников Алексей Георгиевич

Москва — 2019

## Оглавление

	Стр.
<b>Введение . . . . .</b>	<b>4</b>
<b>Глава 1. Текущее состояние проблемы . . . . .</b>	<b>13</b>
1.1 Уравнения Максвелла. Границные условия. . . . .	13
1.2 Продольные электромагнитные волны в материальных средах. .	15
1.3 Установившиеся колебания . . . . .	17
1.4 Электромагнитные свойства металлов . . . . .	18
1.4.1 Гидродинамическая теория движения электронов. Закон Ома. . . . .	21
1.4.2 Модифицированные уравнения Максвелла для установившихся колебаний . . . . .	22
1.4.3 Дополнительное граничное условие . . . . .	24
1.4.4 Модель обобщенного нелокального оптического отклика .	26
1.4.5 Феноменологическое описание нелокального отклика .	27
1.5 Методы решения . . . . .	29
1.5.1 Аналитические методы . . . . .	31
1.5.2 Поверхностные методы . . . . .	32
1.5.3 Объемные методы . . . . .	35
1.6 Выводы . . . . .	38
<b>Глава 2. Гибридная схема метода дискретных источников . . . . .</b>	<b>40</b>
2.1 Основы метода дискретных источников . . . . .	40
2.2 Задачи для частиц с размерами менее 10нм . . . . .	43
2.3 Особенности гибридной схемы . . . . .	48
2.4 Решения для внутренней и внешней задач в случае однородной среды . . . . .	55
2.5 Учет эффекта нелокальности . . . . .	57
2.6 Выводы . . . . .	59
<b>Глава 3. Математические модели плазмонных структур с учетом эффекта нелокальности . . . . .</b>	<b>60</b>

3.1	Одиночная частица в однородной среде . . . . .	60
3.1.1	Постановка задачи . . . . .	60
3.1.2	Спектроскопия характеристических потерь энергии электронами (EELS) . . . . .	63
3.1.3	Вычислительные особенности задач с учетом ЭНЛ . . . . .	65
3.1.4	Численный алгоритм на основе гибридной схемы МДИ . .	68
3.1.5	Результаты моделирования дифракции плоских волн . . .	71
3.1.6	Моделирование EELS . . . . .	76
3.1.7	Обсуждение результатов . . . . .	80
3.2	Димеры в однородной среде . . . . .	81
3.2.1	Постановка задачи . . . . .	81
3.2.2	Особенности реализации численного алгоритма МДИ в случае двух частиц . . . . .	82
3.2.3	Влияние величины зазора на свойства решения . . . . .	84
3.3	Структуры в средах с подложкой . . . . .	88
3.3.1	Постановка задачи . . . . .	88
3.3.2	Метод решения и его компьютерная реализация . . . . .	91
3.3.3	Обсуждение результатов . . . . .	97
3.4	Выводы . . . . .	101
<b>Заключение . . . . .</b>		103
<b>Список литературы . . . . .</b>		105
<b>Приложение А. . . . .</b>		123
A.1	Обоснование полноты и замкнутости системы вертикальных дипольных источников . . . . .	123
A.2	Краткое описание программного комплекса . . . . .	125

## Введение

В настоящее время наблюдается растущий интерес к прикладным задачам наноплазмоники, предметом которой являются уникальные оптические свойства частиц иnanoструктур из металлических и полупроводниковых материалов, обусловленные колебаниями электронов проводимости относительно кристаллической решетки [1]. Присутствие таких структур в среде дает возможность преодолеть дифракционный предел Аббе и получать интенсивные локализованные электромагнитные поля, напрямую зависящие от геометрии nanoструктур или формы наночастицы, благодаря эффекту плазмонного резонанса (ПР) [2; 3]. С учетом современных возможностей синтеза наночастиц это обстоятельство приводит к практически полному контролю над их спектрами, что в свою очередь позволяет разрабатывать инновационные устройства на основе взаимодействия плазмонных структур с электромагнитными волнами и между собой. Среди таких устройств – сверхразрешающие микроскопы, биосенсоры, нанолазер и гиперлинза [4–6]. Отметим, что особый интерес в последнее время вызывают свойства таких nanoструктур, характерные размеры которых не превышают 10нм – как в силу устойчивой тенденции к миниатюризации оптоэлектронных и фотонных устройств, так и в силу уникальных свойств частиц данных размеров [7; 8]. В качестве nanoструктур при этом могут рассматриваться как одиночные частицы, так и кластеры наночастиц, в том числе в присутствии слоистой среды.

Вместе с ростом сложности практических задач возникает естественная потребность в разработке строгих и эффективных подходов математического моделирования для обеспечения и контроля приемлемой точности вычислений. Математическая постановка задачи дифракции электромагнитных полей на металлических и полупроводниковых наночастицах в слоистой среде при этом, как правило, основывается на системе уравнений Максвелла с набором соответствующих граничных условий и условий излучения на бесконечности. Однако, если размер рассматриваемой структуры составляет меньше указанных 10нм, то классическая электродинамическая теория становится не применимой для описания наблюдаемых физических эффектов [9; 10]. Одной из причин возникающих трудностей является тот факт, что вместе с уменьшением размера частицы при достижении области, сравнимой с длиной волны Ферми ( $\sim 5\text{нм}$ )

в металлах, внутри частицы под воздействием внешних полей возникают объемные токи, и, как следствие, продольные электромагнитные поля  $\text{rot} \mathbf{E} = 0$ , которые не описываются в рамках классических уравнений электродинамики. В современной периодической литературе данное явление получило название эффекта нелокальности (ЭНЛ) [11–15]. Вместе с этим нельзя не учитывать и рост влияния чисто квантовых эффектов при существенном уменьшении размеров частиц вплоть до субнанометровых масштабов [16].

Задача исследователя, как правило, состоит в необходимости точно определить положение максимума и амплитуду ПР, происходящего в наноструктурах. Это положение зависит от материала их составляющих, от формы частиц и их размеров, от свойств окружающей среды и поляризации внешнего возбуждения [17; 18]. Было установлено, что ЭНЛ может существенно искажить рассеивающие свойства плазмонных структур, в том числе положение и полуширину ПР, а так же структуру ближнего поля, которая может включать в себя неизлучающие компоненты полей, что приводит к сдвигу в положениях максимумов ближнего и дальнего полей [19–21]. Заметим, что ЭНЛ необходимо учитывать и при анализе свойств популярных в приложениях тонких металлических пленок, а также с учетом полостей в металлах или частицах, имеющих острия или участки малой кривизны [22].

Решение подобной сложной задачи дифракции для частиц произвольной формы в слоистых средах не представляется возможным построить аналитически, поэтому очевидно, что на первый план выходят численные методы решения задач дифракции. В настоящее время существует множество различных подходов, регулярно используемых и постоянно развивающихся [22–26]. Их можно условно разделить на несколько групп. В первую группу входят прямые методы, применяемые непосредственно к системе уравнений Максвелла, такие как метод конечных разностей во временной области и метод конечных элементов, а так же многочисленные подходы на основе метода Галеркина [27–30]. Данные методы являются наиболее популярными во многом благодаря своей универсальности. Ко второй группе относятся численно-аналитические методы объемного характера: дискретное дипольное приближение и объемные интегральные уравнения [23; 31]. В третью группу входят численно-аналитические поверхностно-ориентированные методы: поверхностные интегральные уравнения, метод Т-матриц, метод множественных мультиполей, а также метод дискретных источников (МДИ) [32–36]. Наконец, поскольку очевидно,

что вместе с уменьшением размеров рассматриваемых структур все большую роль начинают играть чисто квантовые эффекты, нельзя не сказать о несколько обособленной четвертой группе методов, основанных на квантовой теории, среди которых наиболее известным является теория зависящего от времени функционала плотности (Time-Dependent Density Functional Theory, TDDFT) [37].

Развитие поверхностно-ориентированных подходов представляется одним из наиболее перспективных направлений исследований, поскольку данные методы позволяют аналитически учесть особенности конкретных задач и упростить вычислительный алгоритм, что, как правило, приводит к повышению точности и производительности вычислений [38]. При этом они применимы к широкому кругу актуальных задач в доквантовом диапазоне размеров структур. Кроме того, в рамках ряда численно-аналитических методов возможно проведение апостериорной оценки погрешности расчетов. Всеми перечисленными достоинствами обладает полуаналитический метод дискретных источников (МДИ), динамично развивающийся научной группой А. Г. Свешникова и Ю. А. Еремина в Московском государственном университете имени М. В. Ломоносова.

**Целью** данной работы является разработка новых математических моделей, позволяющих точно предсказывать отклик миниатюрных плазмонных наносистем с характеристическим размером от 1 до 10 нанометров при их возбуждении различными видами внешних источников, а так же компьютерная реализация данных моделей в форме высокопроизводительного, функционального и гибкого программного обеспечения.

Для достижения поставленной цели были решены следующие **задачи**:

1. Изучение особенностей физических процессов в плазмонных системах, влияющих на их свойства при уменьшении характерного размера частицы.
2. Исследование возможности моделирования таких систем в рамках классической системы уравнений Maxwella, а так же в рамках её расширений, учитывающих динамику поведения носителей тока в плазмонной среде.
3. Анализ возможности реализации учета эффекта нелокальности в рамках различных и широко распространенных вычислительных подходов и обоснование целесообразности выбора полуаналитического метода

дискретных источников для наиболее полного достижения цели настоящей работы.

4. Разработка математических моделей и реализация соответствующих компьютерных модулей для решения задач дифракции плоской волны и электронного пучка на плазмонных наноструктурах с учетом размеров рассматриваемых наносистем, с учетом наличия продольных волн в плазмонной среде, и с учетом расположения структур на подложке.
5. Математическое обоснование предложенных моделей и исследование на их основе пределов применимости «нелокального» описания плазмонных систем. Оценка точности предлагаемого подхода.
6. Реализация программного комплекса, включающего в себя все выше перечисленные модели. Исследование особенностей влияния эффекта нелокальности на экспериментально измеримые характеристики различных наноструктур, такие как сечения рассеяния и спектры характеристических потерь энергии электронами (Electron Energy Loss Spectroscopy, EELS).

### **Научная новизна:**

1. Предложена оригинальная вычислительная схема метода дискретных источников, позволяющая при использовании более узкого класса полных и замкнутых систем функций точно моделировать трехмерные частицы малого диаметра несферической формы в среде с подложкой, получившая название гибридной схемы.
2. Впервые метод дискретных источников применен для решения задачи вычисления потерь энергии электронного пучка и получении соответствующего спектра EELS.
3. Впервые реализован учет эффекта нелокальности в эффективном полуаналитическом методе дискретных источников при решении трехмерных задач дифракции как плоских электромагнитных волн, так и электронного пучка на плазмонных наночастицах в однородной среде. Задача дифракции с учетом эффекта нелокальности так же впервые решена для частицы на подложке.
4. С помощью реализованного на основе предложенного метода программного комплекса выполнено исследование влияния продольных полей на характеристики плазмонных наносистем. Подтверждена работоспособность и высокая эффективность предложенного метода. Круг

решаемых задач не ограничивается рассмотренными в настоящей работе, поскольку гибридная схема МДИ и предложенная интеграция эффекта нелокальности могут быть обобщены на более широкий класс задач дифракции на рассеивателях самых разнообразных форм в слоистых средах.

### **Практическая значимость:**

Все построенные алгоритмы реализованы в виде программного комплекса, который может быть применен для детального изучения рассеивающих свойств широкого класса плазмонных наноструктур указанных размеров в практических задачах проектирования, анализа и оптимизации инновационных устройств. Также данное программное обеспечение может использоваться с целью исследования физических процессов, происходящих в наноразмерных полупроводниковых, металлических и также популярных в приложениях фотоники диэлектрических структурах и метаматериалах для обнаружения новых эффектов, явлений и зависимостей.

**Методология и методы исследования.** В основе методологии исследования лежит теоретический анализ задачи дифракции электромагнитного возмущения на плазмонной наноструктуре и ее решение на основе ряда как вычислительных, так и аналитических подходов, основным из которых является метод дискретных источников. Таким образом, в диссертации используются методы математической физики, электродинамики сплошных сред, численные методы, и некоторые аспекты физики твердого тела и функционального анализа.

**Основные положения, выносимые на защиту** и соответствующие пунктам 3, 4 и 5 паспорта специальности 05.13.18:

1. Предложена модификация метода дискретных источников (МДИ), получившая название гибридной схемы, предполагающая использование более узкого класса полных и замкнутых систем линейно независимых функций с простой структурой носителя.
2. На основе гибридной схемы МДИ разработаны математические модели трехмерных задач дифракции электромагнитных полей на наноразмерных плазмонных структурах, в том числе расположенных на подложке, с учетом эффекта нелокальности.
3. Реализованы численные алгоритмы решения указанных задач дифракции, позволяющие корректно моделировать экспериментально

измеримые характеристики плазмонных наноструктур, таких как дифференциальное сечение рассеяния и спектр характеристических потерь энергии электронами.

4. На основе компьютерной реализации гибридной схемы МДИ проведен анализ оптических свойств наноразмерных структур, представляющих собой как одиночные плазмонные частицы, так и димеры. В качестве внешнего возбуждения использовались поля плоской линейно поляризованной волны и электронного пучка.
5. В результате моделирования установлено существенное влияние ЭНЛ, выражющееся в снижении амплитуды плазмонного резонанса на порядок величины, и в сдвиге резонансной частоты в коротковолновую область на величину от 2 до 15нм, что является критическим для использования наноразмерных частиц в современных технологиях.

**Достоверность** полученных результатов обеспечивается с помощью перекрестного сравнения с доступными аналитическими решениями для простейших плазмонных систем, сравнения с численными результатами, полученными другими авторами в рамках иных подходов, с помощью апостериорной оценки точности вычислений, и с помощью сравнения результатов с имеющимися в литературе экспериментальными данными.

### **Апробация работы.**

Основные результаты диссертации докладывались на 4 научных семинарах Московского государственного университета имени М. В. Ломоносова:

- Семинар «Математические методы в естественных науках» под руководством д.ф-м.н., профессора А.Н. Боголюбова на кафедре математики физического факультета (2019 г.);
- Семинар кафедры математической физики факультета вычислительной математики и кибернетики (2019 г.);
- Международный научный семинар «Advanced Light Scattering Techniques» под руководством д.ф-м.н., профессора А. В. Разгулина, факультет вычислительной математики и кибернетики МГУ имени М.В. Ломоносова (2019 г.);
- Международный научный семинар «Актуальные проблемы математической физики» на кафедре математики физического факультета (2014 г.);

а также на 22 международных и всероссийских научных конференциях и семинарах. Ниже перечислены наиболее важные из них.

- Международный семинар по рассеянию света «Bremen Workshop on Light Scattering» под руководством Т. Вридта в институте материаловедения им. Лейбница, г. Бремен, Германия (2017–2019 гг., неоднократно);
- Международный научный семинар по электронной спектроскопии и рассеянию света «Athens-Moscow-Bremen Workshop on EELS- and Light Scattering Simulation» под руководством Т. Вридта в институте материаловедения им. Лейбница, г. Бремен, Германия (2018 г.);
- Международная конференция «Акустооптические и радиолокационные методы измерений и обработки информации (ARMIMP)», г. Сузdalь (2013 г. – устный доклад, 2017 г. – пленарный доклад);
- Конференция «Ломоносовские чтения», г. Москва, физический факультет МГУ им. М. В. Ломоносова (2019 г.);
- Международный симпозиум «Progress In Electromagnetics Research Symposium (PIERS)», г. Санкт-Петербург (2017 г.);
- Международная конференция «SPIE Optics + Photonics», г. Сан-Диего, (2017 г.);
- Международная конференция по нанофотонике и метаматериалам «METANANO», г. Сочи (2018 г.);
- Всероссийская школа-семинар «Волновые явления в неоднородных средах» имени А. П. Сухорукова («Волны»), д. Красновидово, Московская область (2016–2018 гг., неоднократно);
- Международная конференция германо-российского центра междисциплинарных научных исследований G-RISC (German-Russian Interdisciplinary Science Center) «Science and Progress», г. Санкт-Петербург, Петергоф, Санкт-Петербургский Государственный Университет, физический факультет (2016 г.);
- а так же на многочисленных международных форумах студентов и аспирантов «Ломоносов» в МГУ и других конференциях молодых ученых, в том числе проводимых под эгидой международных сообществ SPIE и OSA.

В 2019 году проект «Analysis of plasmonic nanodimer excited by electron beam (EELS) accounting for Nonlocal Effect with the Discrete Sources Method»,

выполненный в рамках диссертационной работы, был отмечен наградой германо-российского центра междисциплинарных научных исследований G-RISC за лучший проект в области математики.

**Личный вклад.** Представленное исследование является самостоятельной работой автора. Совместно с научным руководителем автором сформулированы цель и задачи исследований. Личный вклад состоит в интеграции теории обобщенного нелокального оптического отклика (ОНО), позволяющей учитывать наличие продольных электромагнитных волн в плазмонной среде, в метод дискретных источников; разработке гибридной схемы метода дискретных источников и построении ряда математических моделей задач дифракции на ее основе, в том числе новой модели дифракции электронного пучка на частице в среде; реализации эффективных вычислительных алгоритмов построенных моделей, а также в создании и тестировании соответствующего программного комплекса; и, наконец, в исследовании влияния эффекта нелокальности на характеристики плазмонных наноструктур. Все численные расчеты проводились автором лично. Автор принимал активное участие в анализе и интерпретации полученных результатов, оформлении публикаций в виде научных статей. Все доклады на конференциях были сделаны им самостоятельно.

Вклад автора диссертации в совместных публикациях [18; 39] заключается в разработке и программной реализации новых математических моделей на основе гибридной схемы МДИ, в их верификации и оценке пределов их применимости, в проведении с их помощью всех вычислительных расчетов, и в непосредственной подготовке и оформлении текстов статей. Обоснование гибридной схемы в работе [39], включающее оценку пределов ее применимости и доказательство теоремы, проведено в тесном сотрудничестве с ведущим специалистом в области математического моделирования и одним из разработчиков метода дискретных источников Ю. А. Ереминым. Теоретические основы модели с учетом эффекта нелокальности в работе [18] также были выработаны в ходе многочисленных дискуссий с Ю. А. Ереминым. Кроме того, Ю. А. Ереминым предоставлены численные результаты для задач дифракции плоской электромагнитной волны на препятствии в рамках общей схемы МДИ для верификации нового подхода, предложенного в диссертации.

**Публикации.** Основные результаты по теме диссертации изложены в 25 печатных изданиях, 3 из которых изданы в журналах, рекомендованных ВАК, и 21 — в сборниках трудов конференций и тезисах докладов. В общей

сложности среди изданных работ 6 опубликованы в изданиях, индексируемых RSCI, Web of Science, Scopus, и определенных п. 2.3 Положения о присуждении ученых степеней в Московском государственном университете имени М.В. Ломоносова (см. список наиболее значимых публикаций на стр. 118).

**Объем и структура работы.** Диссертация состоит из введения, трёх глав, заключения и приложения. Полный объём диссертации составляет 127 страниц, включая 32 рисунка и 1 таблицу. Список литературы содержит 133 наименования.

## Глава 1. Текущее состояние проблемы

### 1.1 Уравнения Максвелла. Границные условия.

В основе математического описания классических явлений плазмоники лежит система уравнений Максвелла для макроскопического электромагнитного поля в среде, которая в системе СГС имеет вид:

$$\text{rot} \mathbf{H} = \frac{1}{c} \frac{\partial \mathbf{D}}{\partial t} + \frac{4\pi}{c} (\mathbf{J} + \mathbf{J}^{\text{ext}}), \quad (1.1)$$

$$\text{rot} \mathbf{E} = -\frac{1}{c} \frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t}, \quad (1.2)$$

$$\text{div} \mathbf{B} = 0, \quad (1.3)$$

$$\text{div} \mathbf{D} = 4\pi\rho + 4\pi\rho^{\text{ext}}. \quad (1.4)$$

Здесь  $c$  – скорость света в вакууме,  $\mathbf{E}, \mathbf{H}$  – векторы напряженности электрического и магнитного полей,  $\mathbf{D}, \mathbf{B}$  – векторы электрической и магнитной индукции,  $\rho, \mathbf{J}$  – макроскопические плотности свободных и сторонних зарядов, а  $\rho^{\text{ext}}, \mathbf{J}^{\text{ext}}$  – макроскопические плотности токов свободных и сторонних зарядов. Будем считать, если не оговорено иначе, что все входящие в данные уравнения векторные величины и величины плотностей зарядов вычисляются в точке  $M$  с радиус-вектором  $\mathbf{r}$  в момент времени  $t$ , то есть  $\mathbf{E} = \mathbf{E}(M,t) = \mathbf{E}(\mathbf{r},t)$ , и так далее.

Из уравнений Максвелла непосредственно следует уравнение непрерывности, или дифференциальный закон сохранения электрического заряда:

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \text{div}(\mathbf{J} + \mathbf{J}^{\text{ct}}) = 0. \quad (1.5)$$

Приведенные уравнения выполняются строго в тех точках, в окрестности которых физические свойства среды, характеризуемые материальными параметрами  $\epsilon, \mu, \sigma$ , изменяются непрерывно. При этом векторные поля могут претерпевать разрыв на границе раздела сред. Поэтому для полноты изложения необходимо привести граничные условия, описывающие поведение полей на поверхностях разрыва материальных характеристик среды.

Для вывода данных граничных условий можно воспользоваться интегральными эквивалентами уравнений Максвелла в соответствии с общим

подходом, известным из курса макроскопической электродинамики [40; 41]. Пусть  $I$  – индекс одной из сред (без ограничения общности будем в дальнейшем считать ее диэлектрической),  $II$  – индекс второй среды (без ограничения общности будем считать ее прозрачной средой с поглощением), а  $\hat{\mathbf{n}}$  – вектор внешней нормали ко второй среде на поверхности их раздела. Тогда граничные условия могут быть записаны в виде:

1. Разрыв нормальной компоненты вектора электрической индукции, получаемый из (1.4):

$$(\mathbf{D}^{II} - \mathbf{D}^I) \cdot \hat{\mathbf{n}} = \rho_{\text{пов}}, \quad (1.6)$$

где  $\rho_{\text{пов}}$  – плотность поверхностных зарядов.

2. Разрыв тангенциальных компонент вектора напряженности магнитного поля, выводимый из (1.1):

$$\hat{\mathbf{n}} \times (\mathbf{H}^{II} - \mathbf{H}^I) = \mathbf{J}_{\text{пов}}, \quad (1.7)$$

где  $\mathbf{J}_{\text{пов}}$  – плотность поверхностных зарядов. При этом в среде с конечной проводимостью, не обладающей поверхностными токами, данное условие трансформируется в

$$\hat{\mathbf{n}} \times (\mathbf{H}^{II} - \mathbf{H}^I) = 0. \quad (1.8)$$

3. Условия непрерывности нормальной компоненты вектора магнитной индукции

$$(\mathbf{B}^{II} - \mathbf{B}^I) \cdot \hat{\mathbf{n}} = 0, \quad (1.9)$$

и тангенциальных компонент вектора напряженности электрического поля

$$\hat{\mathbf{n}} \times (\mathbf{E}^{II} - \mathbf{E}^I) = 0, \quad (1.10)$$

выводимые из интегральных аналогов (1.3) и (1.2), соответственно.

Набор указанных граничных условий для определения неизвестных векторов  $\mathbf{E}$  и  $\mathbf{H}$  в граничной задаче дифракции для уравнений Максвелла без учета пространственной дисперсии является избыточным, и поэтому, как правило, используются только граничные условия (1.8) и (1.10). Кроме этого для обеспечения единственности решения также вводятся материальные уравнения, и ставятся условия на бесконечности, которые будут приведены нами ниже в конкретных задачах.

## 1.2 Продольные электромагнитные волны в материальных средах.

Известно, что макроскопическая система уравнений Максвелла (1.1)–(1.4) является недоопределенной, и для однозначного нахождения электрического и магнитного полей по заданным распределениям зарядов и токов необходимо дополнить их материальными уравнениями, конкретизирующими свойства вещества рассматриваемой среды. Для линейных и изотропных сред их можно записать следующим образом:

$$\mathbf{D}(\mathbf{r}, t) = \int \epsilon(\mathbf{r} - \mathbf{r}', t - t') \mathbf{E}(\mathbf{r}', t') d\mathbf{r}' dt', \quad (1.11)$$

$$\mathbf{B}(\mathbf{r}, t) = \int \mu(\mathbf{r} - \mathbf{r}', t - t') \mathbf{H}(\mathbf{r}', t') d\mathbf{r}' dt', \quad (1.12)$$

$$\mathbf{J}(\mathbf{r}, t) = \int \sigma(\mathbf{r} - \mathbf{r}', t - t') \mathbf{E}(\mathbf{r}', t') d\mathbf{r}' dt'. \quad (1.13)$$

В приведенных уравнениях величины  $\epsilon$  и  $\mu$  являются скалярными диэлектрической и магнитной проницаемостями среды, величина  $\sigma$  характеризует проводимость среды, а их зависимость от пространственных и временных координат называется пространственной и временной дисперсией среды, соответственно [1]. Присутствие пространственной дисперсии в среде означает, что отклик вещества на внешние поля зависит от полей в соседних точках, то есть является пространственно нелокальным. В настоящей работе существенное внимание уделяется задачам, в которых необходимо учитывать такие эффекты, в современной периодике получившие название эффектов нелокальности (ЭНЛ). Эффекты временной дисперсии при этом находятся за рамками нашего рассмотрения.

В случае неподвижных линейных однородных и изотропных сред без учета ЭНЛ вид материальных уравнений существенно упрощается:

$$\mathbf{D} = \epsilon \mathbf{E}, \quad \mathbf{B} = \mu \mathbf{H}, \quad \mathbf{J} = \sigma \mathbf{E}. \quad (1.14)$$

Отметим, что величина  $\epsilon$ , вообще говоря, может быть комплексной. Далее мы будем преимущественно рассматривать немагнитные среды как в данном приближении, так и с учетом пространственной дисперсии, что приведет к более сложной записи некоторых из данных уравнений.

Теперь введенная выше система уравнений Максвелла (1.1)–(1.4) полностью определена. Уделим более пристальное внимание ее анализу в случае сред

без источников. По-прежнему следуя курсу классической электродинамики [41], будем искать ее решение в виде плоских волн, полагая  $\epsilon = \epsilon(\omega)$ ,  $\mu = 1$  и используя временную зависимость  $\exp(j\omega t)$ :

$$\mathbf{E} = \mathbf{E}_0 \exp(j\omega t - j\mathbf{k}_m \mathbf{r}),$$

$$\mathbf{H} = \mathbf{H}_0 \exp(j\omega t - j\mathbf{k}_m \mathbf{r}).$$

Здесь введено понятие волнового вектора в материальной среде  $\mathbf{k}_m$ . Подставляя эти соотношения в уравнения Максвелла, и используя выписанные материальные уравнения для изотропных сред, мы приходим к системе

$$\begin{aligned} \mathbf{k}_m \times \mathbf{H} &= \frac{\omega \epsilon}{c} \mathbf{E}, \\ \mathbf{k}_m \times \mathbf{E} &= -\frac{\omega}{c} \mathbf{H}, \\ \mathbf{k}_m \cdot \mathbf{H} &= 0, \\ \epsilon \mathbf{k}_m \cdot \mathbf{E} &= 0. \end{aligned} \tag{1.15}$$

Нас интересуют следующие важные следствия, в основе которых лежит четвертое из этих соотношений. Во-первых, при  $\mathbf{k}_m \cdot \mathbf{E} = 0$  в среде распространяется поперечная электромагнитная волна, причем для этого необходимо, чтобы выполнялось хорошо известное дисперсионное соотношение

$$k_m^2 = \epsilon(\mathbf{k}_m, \omega) \frac{\omega^2}{c^2}. \tag{1.16}$$

Кроме того, поперечные волны также обладают важным свойством

$$\operatorname{div} \mathbf{E} = 0, \tag{1.17}$$

которое сразу следует из уравнений Максвелла в силу материального уравнения для  $\mathbf{D}$  и не равной нулю диэлектрической проницаемости.

Во-вторых, система (1.15) допускает распространение в материальной среде продольных волн ( $\mathbf{k}_m \cdot \mathbf{E} \neq 0$ ). При этом в силу четвертого уравнения системы

$$\epsilon(\mathbf{k}_m, \omega) = 0. \tag{1.18}$$

Данное выражение играет роль дисперсионного соотношения для продольных волн и физически означает, что их распространение возможно исключительно на частотах, соответствующих нулям диэлектрической проницаемости [1; 41]. Следует особо отметить, что диэлектрическая проницаемость среды при

распространении в ней продольных волн отличается от диэлектрической проницаемости среды, в которой распространяются поперечные волны [1; 42]. Также отметим, что текущее представление для продольного дисперсионного соотношения не позволяет установить явную зависимость между соответствующим волновым числом  $k_m$  и частотой колебаний  $\omega$ . Данный вопрос является ключевым при дальнейшем анализе поведения продольных волн и при их учете в рамках математических моделей задач дифракции, и будет подробно освещен ниже. В частности, показано, что для его успешного разрешения необходимо привлекать теоретические подходы, позволяющие моделировать поведение заряженных частиц в металлических и полупроводниковых средах.

Вводя различные обозначения для диэлектрической проницаемости и волнового числа поперечных  $\epsilon_T, k_T$  и продольных  $\epsilon_L, k_L$  волн в материальной среде, перепишем дисперсионные соотношения в виде

$$k_T^2 = \epsilon_T(k_T, \omega) \frac{\omega^2}{c^2}, \quad (1.19)$$

$$\epsilon_L(k_L, \omega) = 0. \quad (1.20)$$

В настоящее время показано, что эффекты пространственной дисперсии среды могут быть учтены с помощью анализа распространения в ней продольных волн наряду с поперечными [21; 42–44]. В данной работе с помощью численного моделирования мы оценим вклад этих эффектов в оптические свойства однородных и изотропных проводящих наночастиц, находящихся либо в однородном диэлектрическом пространстве, либо расположеннымми вблизи подложки. Для этого будет построен ряд математических моделей для решения соответствующих граничных задач дифракции и реализованы эффективные вычислительные алгоритмы на их основе.

### 1.3 Установившиеся колебания

Прежде, чем перейти к вопросу учета продольных волн, присутствие которых вызывает эффекты пространственной дисперсии среды, условимся в дальнейшем рассматривать случай установившихся электромагнитных колебаний, когда все поля и источники зависят от времени по гармоническому закону  $e^{j\omega t}$ , и перейдем к рассмотрению комплексных амплитуд векторных величин

вида  $\mathbf{E}(M)$  в уравнениях Максвелла:

$$\mathbf{E}(M,t) = \operatorname{Re}\mathbf{E}(M,t) = \operatorname{Re}[\mathbf{E}(M)e^{j\omega t}] \equiv \frac{1}{2}[\mathbf{E}(M)e^{j\omega t} + \mathbf{E}^*(M)e^{-j\omega t}].$$

С учетом материальных уравнений (1.14) для линейной, однородной и изотропной среды со скалярными проницаемостями и проводимостью перепишем уравнения Максвелла в виде

$$\operatorname{rot}\mathbf{H} = jk\epsilon\mathbf{E} + \frac{4\pi}{c}\mathbf{J}^{\text{ext}}, \quad (1.21)$$

$$\operatorname{rot}\mathbf{E} = -jk\mu\mathbf{H}, \quad (1.22)$$

$$\operatorname{div}(\mu\mathbf{H}) = 0, \quad (1.23)$$

$$\operatorname{div}(\epsilon'\mathbf{E}) = 4\pi\rho + 4\pi\rho^{\text{ext}}, \quad (1.24)$$

с уравнением непрерывности

$$\operatorname{div}(\mathbf{J}) + j\omega\rho = 0. \quad (1.25)$$

Здесь  $k = \frac{\omega}{c} = \frac{2\pi}{\lambda}$  – волновое число в вакууме,  $\lambda$  – длина электромагнитной волны в вакууме, а

$$\epsilon = \epsilon' - j\frac{4\pi\sigma}{\omega} \quad (1.26)$$

является комплексной диэлектрической проницаемостью с учетом вклада токов проводимости.

Ниже будут получены уравнения, аналогичные (1.21)-(1.24) для случая однородных изотропных сред с пространственной дисперсией, и будет уделено особое внимание выбору соответствующих граничных условий, обеспечивающих единственное решение задачи дифракции.

## 1.4 Электромагнитные свойства металлов

Для изучения и корректного моделирования оптических свойств прозрачных сред необходимо знать их материальные параметры, такие как диэлектрическая проницаемость и проводимость, которые могут быть получены либо экспериментальным, либо теоретическим путем. Как правило, в

области оптических частот диэлектрическую проницаемость экспериментально определяют через измеренные значения показателя преломления среды  $n'$  и коэффициента поглощения  $\chi$ , причем в данном случае можно ввести комплексный показатель преломления  $n = n' - j\chi$  с учетом выбранной выше временной зависимости [45; 46]. В случае немагнитных сред с  $\mu = 1$  величина  $n$  однозначно связывается со скалярной диэлектрической проницаемостью среды, соответствующей поперечным волнам, с помощью соотношения  $n^2 = \epsilon = \epsilon' - j\frac{4\pi\sigma}{\omega}$  [41]. В свою очередь, для корректного расчета соответствующих значений диэлектрических проницаемостей в зависимости от имеющих место в среде физических явлений необходимо привлекать некий теоретический аппарат. В случае металлических сред необходимо использовать теорию твердого тела. В частности, для широкого диапазона частот оптические свойства металлов могут быть объяснены с помощью моделей, основанных на модели свободных электронов (плазменной модели) Друде-Зоммерфельда [1; 47–49].

В рамках базовой модели Друде-Зоммерфельда газ свободных электронов с концентрацией носителей заряда  $\tilde{n}_0$  движется относительно положительно заряженной кристаллической решетки. Заряд каждого электрона равен  $e$ , а эффективная масса  $-m_e$ . Частота столкновений электронов вводится как  $\gamma = 1/\tau$ , где  $\tau$  – время релаксации свободного электронного газа, по порядку величины равная  $10^{-14}$  с при комнатной температуре [1]. С помощью классического уравнения движения электрона в среде определяется восприимчивость металла и дипольный момент макроскопической поляризации, вслед за которыми находится значение поперечной диэлектрической проницаемости в виде

$$\epsilon_{Drude}(\omega) = 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega(\omega - j\gamma)},$$

где  $\omega_p^2 = 4\pi n_0 e^2 / m_e$  – так называемая частота плазменных колебаний неэкранированного свободного электронного газа в металле, или ленгмюровская частота [41]. Обратим внимание, что второе слагаемое в общем случае обладает как вещественной, так и мнимой компонентами. Кроме того, может быть введено понятие проводимости Друде:

$$\sigma_d = \frac{-j\omega_p^2}{4\pi(\omega - j\gamma)}$$

Следует отметить, что в простой модели свободных электронов не принимаются во внимание электрон-электронные взаимодействия, неоднородности

решеточного потенциала, и межзонные переходы в металлах, и все влияние зонной теории сводится к введению эффективной массы электрона вместо массы стандартного свободного электрона [1]. Однако на её основе успешно строятся более сложные модели плазменных колебаний электронов с учетом пространственной дисперсии, подробно изложенные, например, в работах [42–44; 50]. Наиболее распространенной моделью является гидродинамическая теория (ГДТ) поведения газа свободных электронов в металле, важным следствием из которой посвящен следующий раздел. Но прежде, чем переходить к их рассмотрению, отметим, что, помимо уже упомянутых ограничений, в модели свободных электронов для ряда благородных металлов в частотной области  $\omega > \omega_p$  оказывается существенным вклад связанных зарядов ионной решетки, и более адекватным выражением для соответствующей диэлектрической проницаемости типа Друде является

$$\varepsilon_d(\omega) = \varepsilon_{core}(\omega) - \frac{\omega_p^2}{\omega(\omega - j\gamma)},$$

где вклад ионного остова описывается посредством  $\varepsilon_{core}(\omega)$  [1; 21; 51]. Данное выражение можно переписать с помощью проводимости Друде в виде (1.26):

$$\varepsilon_d(\omega) = \varepsilon'(\omega) - j \frac{4\pi\sigma_d}{\omega}, \quad (1.27)$$

где мы формально будем полагать  $\varepsilon'(\omega) = \varepsilon_{core}(\omega)$ . Весьма существенным является то обстоятельство, что в общем случае проводимость Друде обладает как вещественной, так и мнимой частями [49]. Выражение для диэлектрической проницаемости Друде в данной форме широко используется в работах современных исследователей.

В дальнейшем мы будем существенно учитывать вклад ионного остова и пользоваться выражением (1.27). Как будет показано далее, подходы на основе электронного газа позволяют не только предсказывать значения поперечной диэлектрической проницаемости, но и записывать в явном виде уравнения для продольной диэлектрической проницаемости при наличии пространственной дисперсии в среде, что, в свою очередь, позволяет получать аналитические выражения для закона дисперсии продольных волн.

### 1.4.1 Гидродинамическая теория движения электронов. Закон Ома.

Кратко изложим основополагающие факты гидродинамической теории, необходимые для построения математических моделей плазмонных наночастиц с учетом распространяющихся в материальной среде продольных волн, приводящих к эффектам пространственной дисперсии. Впервые предложенная Блохом в работе [52] формулировка ГДТ с тех пор претерпела ряд изменений, среди которых следует отметить переход к обобщенной формулировке через понятие функционала плотности [53] и включение учета запаздывания [54]. Данная теория остается актуальной в наши дни, и с ее помощью исследуются в том числе эффекты нелокальности в задачах электронной микроскопии [55–57].

Для наших целей наиболее важными являются два обстоятельства. Во-первых, добавление уравнений ГДТ к системе уравнений Максвелла позволяет получить всю необходимую информацию для описания продольных волн [42; 44; 58]. Система уравнений при этом не становится недоопределенной или переопределенной, поскольку учет ГДТ, по сути, приводит к модификации материальных уравнений. Кратко этот процесс можно описать следующим образом. Поскольку гидродинамические уравнения являются сложными нелинейными уравнениями, для получения решения проводится их линеаризация по теории возмущений. В свою очередь, из линеаризованных гидродинамических уравнений выводится модификация одного из материальных уравнений – закона Ома для напряженности электрического поля и плотности тока [21]:

$$\frac{\beta^2}{\omega^2 - j\gamma\omega} \nabla (\nabla \cdot \mathbf{J}(\mathbf{r}, \omega)) + \mathbf{J}(\mathbf{r}, \omega) = \sigma_d \mathbf{E}(\mathbf{r}, \omega), \quad (1.28)$$

где в случае рассматриваемых нами задач  $\beta^2 = 3/5v_F^2$ ,  $v_F$  – скорость Ферми.

Во-вторых, из соображений ГДТ (либо более общих, см. далее раздел 1.4.4) также выводятся формулы, описывающие поведение продольной и поперечной диэлектрических проницаемостей [42–44; 59; 60], что является существенным для нахождения продольного волнового числа:

$$\epsilon_T(\omega) = \epsilon' - \frac{\omega_p^2}{\omega^2 - j\gamma\omega}, \quad (1.29)$$

$$\epsilon_L(\omega) = \epsilon' - \frac{\omega_p^2}{\omega^2 - j\gamma\omega - \beta^2 k_L^2}. \quad (1.30)$$

Отсюда непосредственно следует, что неизвестный ранее закон дисперсии для продольных волн (1.20) принимает вид

$$k_L^2 = \frac{\omega^2 - j\gamma\omega - \omega_p^2/\epsilon'}{\beta^2}, \quad (1.31)$$

в который явно входят параметры, определенные в рамках ГДТ. Это уравнение позволяет как провести оценку величины продольного волнового числа (см. п. 3.1.3), так и учитывать влияние продольных волн в математических моделях. Отметим, что выражения (1.29-1.30) также получены в рамках линеаризованных гидродинамических уравнений.

#### 1.4.2 Модифицированные уравнения Максвелла для установившихся колебаний

Модификация одного из материальных уравнений приводит к тому, что уравнения Максвелла для установившихся колебаний принимают иную форму. Убедимся в этом, выразив  $\mathbf{J}$  из уравнения Максвелла для  $\text{rot}\mathbf{H}$  (1.1) и подставив его в гидродинамический закон Ома (1.28) с сохранением выбора временной зависимости в виде  $\exp(j\omega t)$ . Без ограничения общности будем полагать, что  $\mathbf{J}_{ext} = 0$ . Тогда:

$$\mathbf{J}(\mathbf{r},\omega) = \frac{c}{4\pi} (\text{rot}\mathbf{H}(\mathbf{r},\omega) - jk\mathbf{D}(\mathbf{r},\omega)).$$

С учетом равенства нулю дивергенции ротора, имеем

$$\frac{\beta^2}{\omega^2 - j\gamma\omega} \text{graddiv} \left( \frac{-j\omega}{4\pi} \mathbf{D} \right) + \frac{c}{4\pi} (\text{rot}\mathbf{H} - jk\mathbf{D}) = \sigma_d \mathbf{E},$$

Применяя операцию ротора к уравнению Максвелла для  $\text{rot}\mathbf{E}$  (1.2) и выражая оттуда  $\text{rot}\mathbf{H}$ , а также учитывая материальное уравнение  $\mathbf{D} = \epsilon' \mathbf{E}$ , получим искомое основное уравнение для напряженности электрического поля:

$$\text{rotrot}\mathbf{E}(\mathbf{r},\omega) = \left( k^2 \epsilon_d \mu + \frac{\beta^2 \epsilon'}{\omega(\omega - j\gamma)} \text{graddiv} \right) \mathbf{E}(\mathbf{r},\omega), \quad (1.32)$$

которое, очевидно, также может быть записано в виде модифицированного уравнения Максвелла для случая установившихся колебаний:

$$\text{rot}\mathbf{H}(\mathbf{r},\omega) = jk \left( \epsilon_d + \frac{\beta^2 \epsilon'}{\omega(\omega - j\gamma)} \text{graddiv} \right) \mathbf{E}. \quad (1.33)$$

Обсудим некоторые особенности данного уравнения. В первую очередь очевидно, что при стремлении  $\beta \rightarrow 0$  мы получаем стандартное уравнение Максвелла (1.21) без учета вклада линеаризованных уравнений ГДТ. Во-вторых, очевидно, что поперечные волны, удовлетворяющие условию  $\operatorname{div}\mathbf{E}(\mathbf{r},\omega) = 0$  (1.17) в однородных средах, не вносят никакого вклада в дополнительное слагаемое. В-третьих, из данного уравнения легко получить два уравнения Гельмгольца следующего вида [21; 42; 44]:

$$\left( \nabla^2 + \frac{\varepsilon_d \omega (\omega - j\gamma)}{\varepsilon' \beta^2} \right) \operatorname{div}\mathbf{E}(\mathbf{r},\omega) = 0,$$

$$\left( \nabla^2 + \left( \frac{\omega}{c} \right)^2 \varepsilon_d \right) \operatorname{rot}\mathbf{E}(\mathbf{r},\omega) = 0,$$

Оба уравнения получены с использованием известного соотношения для операторов векторной алгебры  $\operatorname{rot}\operatorname{rot}\mathbf{E} = \operatorname{grad}\operatorname{div}\mathbf{E} - \nabla^2\mathbf{E}$ , только в первом случае из уравнения исключается слагаемое  $\operatorname{grad}\operatorname{div}$  с последующим взятием дивергенции от обеих частей, тогда как во втором случае из основного уравнения исключается слагаемое  $\operatorname{rot}\operatorname{rot}$  с последующим взятием ротора от обеих частей и приведением полученного выражения к стандартной форме уравнения Гельмгольца.

Используя ранее введенные обозначения (1.31) и (1.19), можно переписать данные уравнения в более наглядной форме:

$$(\nabla^2 + k_L^2) \operatorname{div}\mathbf{E}(\mathbf{r},\omega) = 0, \quad (1.34)$$

$$(\nabla^2 + k_T^2) \operatorname{rot}\mathbf{E}(\mathbf{r},\omega) = 0. \quad (1.35)$$

Вводя далее представление для полной напряженности электрического поля в виде суммы продольного и поперечного полей

$$\mathbf{E} = \mathbf{E}_T + \mathbf{E}_L, \quad (1.36)$$

легко заметить, что полученные уравнения независимо описывают данные компоненты, причем, если  $\operatorname{div}\mathbf{E}_T = 0$ , и первое уравнение описывает только продольные волны, то из дисперсионных соотношений для продольных и поперечных волн и из второго уравнения следует  $\operatorname{rot}\mathbf{E}_L = 0$  [21].

Наконец, также очевидно, что внесенная в уравнения Максвелла (1.33) поправка для поля  $\mathbf{E}$  никак не влияет на напряженность магнитного поля  $\mathbf{H}$ , что следует из уравнения (1.22) с учетом равенства нулю ротора от напряженности электрического поля продольной волны.

Таким образом, ГДТ позволяет однозначно определить волновое число (1.31), с которым распространяются продольные электромагнитные волны в среде, и получить явный вид основных уравнений как в форме модифицированного уравнения Максвелла для случая установившихся колебаний (1.32), так и в форме уравнений Гельмгольца, независимо описывающих продольную и поперечную компоненты поля. Последнее обстоятельство является особенно важным, в том числе для построения эффективных вычислительных алгоритмов. Ещё раз отметим, что сказанное справедливо для случая однородной среды.

### 1.4.3 Дополнительное граничное условие

Появление новой неизвестной величины – напряженности продольного электрического поля  $\mathbf{E}_L$  – требует привлечения дополнительного граничного условия для обеспечения однозначности решения граничной задачи дифракции для системы уравнений Максвелла. Как уже отмечалось, для решения соответствующей задачи в отсутствие продольных полей обычно используются условия (1.8) и (1.10), тогда как два других условия (1.6) и (1.9), полученные из интегральных эквивалентов уравнений Максвелла, являются избыточными. Однако теперь представляется разумным включить в систему граничных условий уравнение для нормальных компонент вектора  $\mathbf{D}$  (1.6), поскольку с ним связаны неизвестные величины напряженности электрических продольного и поперечного полей через материальное уравнение  $\mathbf{D} = \epsilon' \mathbf{E}$  с учетом представления (1.36) для вектора  $\mathbf{E}$ . Рассмотрим данное условие подробнее для случая границы раздела металл-диэлектрик, изучаемого в настоящей работе.

Из уравнения (1.24), которое линейно зависимо с модифицированным для учета ЭНЛ уравнением Максвелла (1.33), легко получить уравнение для обобщенного вектора электрической индукции  $\hat{\mathbf{D}} = \mathbf{D} + j \frac{4\pi}{\omega} \mathbf{J}$ :

$$\operatorname{div} \left( \mathbf{D} + j \frac{4\pi}{\omega} \mathbf{J} \right) = 4\pi \rho^{ext},$$

откуда, следуя стандартной процедуре вывода граничного условия для нормальных компонент вектора  $\mathbf{D}$  и используя соответствующее материальное

соотношение, получаем

$$\left( (\varepsilon')^{II} \mathbf{E}^{II} + j \frac{4\pi}{\omega} \mathbf{J}^{II} - \varepsilon^I \mathbf{E}^I \right) \cdot \hat{\mathbf{n}} = 0,$$

где  $\hat{\mathbf{n}}$  – вектор внешней нормали к металлическому рассеивателю, введенный в пункте 1.1. С учетом выражения для диэлектрической проницаемости (1.27), в случае отсутствия пространственной дисперсии и простого закона Ома для плотности тока в среде  $\mathbf{J} = \sigma_d \mathbf{E}$ , это условие переписывается в классическом виде непрерывности нормальных компонент обобщенного вектора  $\mathbf{D}$ , или же разрыва нормальных компонент вектора напряженности электрического поля (1.6):

$$(\varepsilon_d^{II} \mathbf{E}^{II} - \varepsilon^I \mathbf{E}^I) \cdot \hat{\mathbf{n}} = 0. \quad (1.37)$$

Однако учет ЭНЛ приводит к необходимости внесения изменений в данное условие с учетом модифицированного закона Ома (1.28). По этому вопросу состоялось множество дискуссий и опубликовано множество работ [21; 42; 61–65], среди которых опубликованы в том числе теории, не требующие привлечения дополнительных граничных условий [57; 66]. Несмотря на видимую противоречивость некоторых из этих подходов, экспериментально установлено, что она, как правило, объясняется определенными пределами применимости каждого из них [8]. Мы будем в основном следовать подходу, который заключается в наложении дополнительного ограничения на поведение свободных зарядов вблизи поверхности частицы. А именно, будем полагать, что равновесная плотность газа свободных электронов  $\tilde{n}_0$  в металле на границе с диэлектриком имеет ступенчатый профиль и равна константе внутри металла, тогда как в диэлектрике и на поверхности раздела сред она равна нулю. Следствием данного предположения является равенство нулю плотности индуцированных зарядов на границе раздела и, соответственно, равенству нулю нормальной компоненты плотности тока [21; 62; 65]:

$$\mathbf{J} \cdot \hat{\mathbf{n}} = 0.$$

Подобный подход показал свою состоятельность в широком круге задач, однако следует отметить, что в его рамках нельзя учитывать квантовомеханический эффект выхода электронов из металлической среды.

С учетом сказанного можно записать дополнительное граничное условие в виде

$$((\varepsilon')^{II} \mathbf{E}^{II} - \varepsilon^I \mathbf{E}^I) \cdot \hat{\mathbf{n}} = 0. \quad (1.38)$$

Видно, что оно по-прежнему представляет собой разрыв нормальных компонент напряженности электрического поля, но уже с другим значением диэлектрической проницаемости.

#### 1.4.4 Модель обобщенного нелокального оптического отклика

На основе ГДТ в ряде недавних работ предложена теория, позволяющая, помимо конвективных токов, учитывать диффузационные токи в модели электронного газа, поведение которых было описано в работах [67; 68]. В рамках данной теории учет диффузационного слагаемого дает новое выражение для нового модифицированного закона Ома (1.28) с отличием в множителе перед первым слагаемым [69]:

$$\left( \frac{\beta^2}{\omega^2 - j\gamma\omega} - \frac{D}{j\omega} \right) \nabla (\nabla \cdot \mathbf{J}(\mathbf{r}, \omega)) + \mathbf{J}(\mathbf{r}, \omega) = \sigma_d \mathbf{E}(\mathbf{r}, \omega).$$

Здесь  $D$  – постоянная диффузии электронов. Непосредственно суммируя слагаемые в множителе перед первым членом уравнения и проводя выкладки, аналогичные разделу 1.4.2, можно немедленно получить модифицированное основное уравнение для вектора  $\mathbf{E}$  (1.32) в рамках данного подхода, а так же выражение для продольного волнового числа с учетом диффузии электронов:

$$k_L^2 = \frac{\omega^2 - j\gamma\omega - \omega_p^2/\varepsilon_{core}}{\beta^2 + D(\gamma - j\omega)} = \frac{\omega^2 - j\gamma\omega - \omega_p^2/\varepsilon_{core}}{\eta^2}, \quad (1.39)$$

где  $\eta^2 = \beta^2 + D(\gamma - j\omega)$  – множитель, в отсутствие диффузии  $D = 0$  сводящийся к гидродинамическому множителю  $\beta^2$ .

Настоящая модель получила название теории обобщенного нелокального оптического отклика (ОНОО) и показала свою состоятельность [21], вследствие чего будет также подробно рассмотрена в контексте реализации в численных методах нанооптики и плазмоники.

#### 1.4.5 Феноменологическое описание нелокального отклика

К уравнению (1.32) можно прийти и из других соображений без привлечения подходов ГДТ и ОНО [11; 66], вводя малые поправки к классической теории локального отклика, полностью описываемой комплексной скалярной диэлектрической проницаемостью и поперечными электромагнитными волнами. Поскольку для локальной проводимости без учета пространственной дисперсии с учетом теории Друде справедливо выражение

$$\sigma(\mathbf{r} - \mathbf{r}', \omega) = \sigma_d(\omega) \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}'),$$

и поскольку локальная теория хорошо описывает очень широкий круг физических явлений, возникающих в том числе в задачах с металлами, для изотропной среды представляется возможным записать следующее выражение для проводимости с некоторой малой поправочной скалярной функцией  $f(|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|, \omega)$

$$\sigma(\mathbf{r} - \mathbf{r}', \omega) = \sigma_d(\omega) \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}') + f(|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|, \omega),$$

физически связанной с нелокальным откликом в однородной среде. Подстановка данного выражения в материальное уравнение для вектора  $\mathbf{J}$  дает

$$\mathbf{J}(\mathbf{r}, \omega) = \sigma_d(\omega) \mathbf{E}(\mathbf{r}, \omega) + \int f(|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|, \omega) \mathbf{E}(\mathbf{r}', \omega) d\mathbf{r}'. \quad (1.40)$$

Помимо малости данной поправки так же делаются разумные предположения о ее симметричности и близкодействии с помощью введения следующих условий для моментов данной функции:

$$\begin{aligned} \int f(\mathbf{r}, \omega) d\mathbf{r} &\ll \sigma_d(\omega), \\ \int \mathbf{r} f(\mathbf{r}, \omega) d\mathbf{r} &= 0, \\ \int \mathbf{r}^2 f(\mathbf{r}, \omega) d\mathbf{r} &= -2j\omega\xi^2. \end{aligned}$$

Здесь  $\xi$  – физическая величина с размерностью расстояния, соответствующая масштабу нелокального отклика среды, а множитель  $-2j\omega$  введен для удобства дальнейших выкладок и сравнения полученных формул с формулами ГДТ. В силу малого масштаба поправочной функции  $f$ , появляется возможность разложить электромагнитное поле  $\mathbf{E}(\mathbf{r}', \omega)$  в ряд Тейлора в окрестности точки  $\mathbf{r}$

вплоть до членов второго порядка включительно, и затем, проинтегрировав полученное выражение в формуле (1.40), получить поправку для закона Ома [21]:

$$\mathbf{J}(\mathbf{r}, \omega) = \sigma_d \mathbf{E}(\mathbf{r}, \omega) - j\omega \xi^2 \nabla^2 \mathbf{E}(\mathbf{r}, \omega),$$

что позволяет легко получить основное уравнение для вектора  $\mathbf{E}$ , пользуясь уравнением непрерывности, связывающим заряды и токи, и уравнение Максвелла для дивергенции вектора электрической индукции  $\mathbf{D}$ :

$$\text{rotrot} \mathbf{E}(\mathbf{r}, \omega) = \left( \frac{\omega}{c} \right)^2 (\varepsilon_d + \xi^2 \nabla^2) \mathbf{E}(\mathbf{r}, \omega). \quad (1.41)$$

Единственным отличием данного уравнения от уравнения ГДТ (1.32) (или аналогичного в ОНОО) является оператор  $\nabla^2$ , однако его раскрытие через соотношение  $\text{rotrot} \mathbf{E} = \text{graddiv} \mathbf{E} - \nabla^2 \mathbf{E}$  дает схожее уравнение

$$\left( 1 + \left( \frac{\omega}{c} \right)^2 \xi^2 \right) \text{rotrot} \mathbf{E}(\mathbf{r}, \omega) = \left( \frac{\omega}{c} \right)^2 (\varepsilon_d + \xi^2 \text{graddiv}) \mathbf{E}(\mathbf{r}, \omega),$$

которое при рассмотрении оптического диапазона частот  $\omega \sim 10^{15}$  рад/с и при предположении о величине масштаба нелокальности [70]  $\xi \sim 10^{-10}$  м сводится к полученному в ГДТ уравнению (1.32) в силу малости величины  $\left( \frac{\omega}{c} \right)^2 \xi^2 \sim 10^{-8}$  по сравнению с единицей.

Данный подход удобен тем, что позволяет осмысленно ввести в рассмотрение величину  $\xi$  с размерностью расстояния, соответствующую масштабу пространственной дисперсии, или масштабу нелокальности в среде, и выражать через нее ряд уже введенных в рамках подходов ГДТ и ОНОО величин. Так, сопоставление уравнений (1.32) и (1.41) позволяет записать

$$\xi_{\text{ГДТ}}^2 = \frac{\varepsilon' \beta^2}{\omega(\omega - j\gamma)}, \quad (1.42)$$

$$\xi_{\text{ОНОО}}^2 = \frac{\varepsilon' (\beta^2 + D(\gamma - j\omega))}{\omega(\omega - j\gamma)}, \quad (1.43)$$

$$k_L^2 = \frac{\varepsilon_d}{\xi(\omega)^2}, \quad (1.44)$$

причем в выражении для  $k_L$  без ограничения общности используется значение  $\xi$  в соответствии с выбранным подходом к учету пространственной дисперсии в среде. Как и ожидалось, размерность  $\xi$  в обоих случаях совпадает с размерностью расстояния. Более подробно значения и поведение величины  $\xi$  в

зависимости от частоты электромагнитного поля  $\omega$  и материала среды будут рассмотрены в разделе 3.1.3 настоящей работы.

Подведем итог приведенного подробного обзора существующих теоретических методов работы со средами с пространственной дисперсией. В рамках ГДТ и ОНОО физические принципы возникновения ЭНЛ можно описать следующим образом: по мере того, как размер рассеивателя из благородного металла становится меньше длины свободного пробега электронов в материале, свободные заряды накапливаются у поверхности рассеивателя, после чего внутри него формируются пространственный заряд и ток. В этом случае электрическое поле внутри рассеивателя перестает быть чисто поперечным ( $\operatorname{div}\mathbf{E} = 0$ ), и для корректного моделирования физических эффектов требуется привлечение продольных полей ( $\operatorname{rot}\mathbf{E} = 0$ ) [17]. Данное обстоятельство необходимо учитывать при записи математической постановки задачи рассеяния, поскольку в этом случае для ее однозначной разрешимости требуется привлечение дополнительного граничного условия.

Таким образом, для корректного учета ЭНЛ в рамках установившихся колебаний необходимо рассматривать систему уравнений Максвелла в виде (1.33), (1.22)–(1.24) с разложением поля  $\mathbf{E}$  в виде (1.36), привлечением трех граничных условий (1.8), (1.10) и (1.38) и стандартных условий излучения на бесконечности. При этом, как показано в п. 3.1.3 настоящей работы, абсолютная величина продольного волнового вектора  $k_L$  может на порядок отличаться от величины  $k_T$  в большую сторону, что влечет определенные трудности при численном решении данной задачи. Рассмотрим теперь наиболее распространенные методы, применяемые для решения локальных граничных задач для уравнений Максвелла, и проанализируем возможность их расширения на случай анализа сред с пространственной дисперсией в рамках предложенных моделей учета ЭНЛ.

## 1.5 Методы решения

Существует множество подходов для решения комплекса граничных задач дифракции, поставленных в виде (1.21)–(1.24) с соответствующими граничными условиями (1.8), (1.10). Их можно условно разделить на несколько групп. В

первую группу входят прямые методы, применяемые непосредственно к системе уравнений Максвелла, такие как метод конечных разностей во временной области и метод конечных элементов, а так же подходы на основе метода Галеркина [27—30]. Данные методы являются наиболее популярными во многом благодаря своей универсальности. Ко второй группе относятся численно-аналитические методы объемного характера: дискретное дипольное приближение и объемные интегральные уравнения [23; 31]. Подобные подходы заключаются в сведении исходной задачи рассеяния к эквивалентному интегральному уравнению с последующей дискретизацией. В третью группу входят численно-аналитические поверхностно-ориентированные методы: поверхностные интегральные уравнения, метод Т-матриц, метод множественных мультиполей, а также метод дискретных источников (МДИ) [32—36; 38; 71; 72]. Наконец, поскольку очевидно, что вместе с уменьшением размеров рассматриваемых структур все большую роль начинают играть чисто квантовые эффекты, нельзя не сказать о несколько обособленной четвертой группе методов, в которую можно включить как подходы, полностью основанные на квантовой теории (например, теория зависящего от времени функционала плотности, англ. Time-Dependent Density Functional Theory, TDDFT), так и попытки описания некоторых квантовых явлений в рамках классической теории (например, модель с квантовой поправкой, англ. Quantum-Corrected Model, QCM) [16; 37; 73]. К числу таких попыток можно отнести и методы, основанные непосредственно на решении гидродинамических уравнений с той или иной модификацией формулы для диэлектрической проницаемости, в рамках которых удается успешно описать, например, квантовый эффект нелокального экранирования [57; 74]. Остановимся подробнее на наиболее известных и эффективных методах из всех групп, и проанализируем их применимость к задачам плазмоники, в том числе с учетом эффектов пространственной дисперсии.

Следует отметить, что ряд подходов могут быть обобщены на случай уравнений Максвелла в виде (1.33), (1.22)–(1.24) с тремя граничными условиями (1.8), (1.10), (1.38), учитывающими пространственную дисперсию плазмонной среды. Кроме того, для простейших случаев, таких, как граничная задача дифракции на теле сферической формы, существуют аналитические методы решения. Поскольку данный частный случай крайне важен для верификации новых вычислительных алгоритмов, начнем обзор численных методов с его рассмотрения.

### 1.5.1 Аналитические методы

Среди аналитических подходов наиболее известным является метод разделения переменных, на котором основана **теория рассеяния Ми** для дифракции электромагнитных волн на однородной изотропной немагнитной сфере в однородной непоглощающей среде и ряд её расширений [75]. В ее рамках задача рассеяния сводится к аналитическому уравнению для коэффициентов Ми. Впервые основные принципы теории Ми в терминах векторных сферических волновых функций были даны Стрэттоном [76]. В настоящее время существует множество расширений этой теории, позволяющих моделировать рассеяние магнитными сферами, сферами с оболочкой, слоистыми частицами, сферами с киральным покрытием и частицами, форма которых немного отличается от сферической [77–82]. В последнем случае предполагается, что частица однородна, а отклонение от сферичности мало и описывается гладкой функцией. Кроме того, следует отметить, что существует расширение метода разделения переменных на случай сфeroидов, которое активно применяется и развивается группой В.Г. Фарафонова для исследования дифракции на сфероидальных частицах [83]. В случае диэлектрического рассеивателя реализация данного подхода требует решения систем для определения амплитуд.

Для наших целей более важно, что теория Ми была обобщена на случай нелокального отклика металлической сферы с помощью учета продольных волн в работах Ruppin [9; 84]. Кроме того, для решения ряда задач была введена мультипольная поляризуемость металлической сферы с учетом нелокальных эффектов, которая была успешно применена для моделирования оптических свойств частиц с радиусом менее 10nm, для которых можно пренебречь эффектами запаздывания [85–88].

В частности, далее в главе 3 для верификации вычислительных алгоритмов мы будем пользоваться аналитическим решением для плазмонных сферических частиц радиусом менее 20nm, предложенным в работе [21]. Данное решение основывается на вводе величины нелокальной дипольной поляризуемости малой сферы, основной вклад в отклик которой вносит дипольная мода

$$\alpha_{NL} = 4\pi R_{sph}^3 \frac{\epsilon_d - \epsilon_{medium}(1 + \delta_{NL})}{\epsilon_d + 2\epsilon_{medium}(1 + \delta_{NL})},$$

где нелокальная поправка определяется соотношением

$$\delta_{NL} = \frac{\epsilon_d - \epsilon'}{\epsilon'} \frac{j_1(k_L R_{sph})}{k_L R_{sph} j'_1(k_L R_{sph})},$$

причем  $j_1(\cdot)$  — сферическая функция Бесселя первого рода,  $j'_1$  — производная по аргументу сферической функции Бесселя,  $R_{sph}$  — радиус сферы,  $\epsilon_{medium}$  — показатель преломления окружающей диэлектрической среды [89]. Величины продольного волнового числа  $k_L$  и диэлектрической проницаемости сферы  $\epsilon_d$  введены выше при анализе пространственной дисперсии среды в рамках подходов ГДТ и ОНОО. Полное сечение рассеяния такой сферы может быть вычислено по формуле

$$\sigma = \frac{k_{medium}^4}{6\pi} |\alpha_{NL}|^2, \quad (1.45)$$

где  $k_{medium}^2 = (\omega/c)^2 \epsilon_{medium}$ .

Следует также отдельно отметить возможность построения аналитического решения для классической задачи рассеяния электронного пучка на сферической наночастице в однородном пространстве, которое также будет использовано нами для верификации новых вычислительных алгоритмов [90; 91].

### 1.5.2 Поверхностные методы

Среди большого количества поверхностно-ориентированных подходов в первую очередь следует выделить методы на основе **интегральных уравнений**, которые основаны на теории потенциалов [27; 32]. В рамках данного подхода исходная краевая задача сводится к эквивалентным контурным интегральным уравнениям, которые удобно использовать не только для построения вычислительных алгоритмов, но и для теоретических исследований задач дифракции, в том числе — для доказательства теорем существования решений, что является их большим преимуществом. На основе метода интегральных уравнений построены эффективные алгоритмы для решения задач дифракции плоских волн на цилиндрических структурах, представляющих собой как одиночные однородные цилиндры, так и решетки из цилиндров произвольного сечения, а также для решения задач отражения волн от волнистых и локально

неоднородных границ раздела сред. Для вывода поверхностных интегральных уравнений в конкретной задаче, как правило, требуется корректно построить функцию Грина. Вид конкретных интегральных уравнений определяется фундаментальным решением выбранной краевой задачи. Таким образом, подходы на основе поверхностных интегральных уравнений позволяют строить эффективные решения для задач дифракции на однородных рассеивателях. В случае неоднородных рассеивателей могут использоваться методы на основе объемных интегральных уравнений, требующие генерации достаточно мелких объемных сеток [31].

Следует отметить, что на основе решений уравнений Гельмгольца строится большинство численно-аналитических поверхностных подходов. За счет этого в их рамках удается аналитически учесть ряд особенностей конкретных задач, и тем самым существенно облегчить построение вычислительных алгоритмов. В качестве примера одного из широко распространенных поверхностных методов можно привести **метод Т-матриц**. В его рамках происходит разложение в ряд по сферическим волновым функциям падающего, внутреннего, и рассеянного поля. Соответствующие коэффициенты разложения спиваются с помощью граничных условий и с учётом уравнений Максвелла. В результате такой спивки составляется матрица перехода, или Т-матрица (Transition matrix), которая связывает коэффициенты падающего и рассеянного полей.

Для вычисления элементов Т-матрицы необходимо прибегать к процедуре численного интегрирования, причем в случае анализа частицы произвольной формы ее реализация осложняется присутствием поверхностных интегралов. Эта задача требует немалых вычислительных ресурсов. При этом в итоге можно столкнуться с определённым пределом вычислительной сходимости, вызванным плохой обусловленностью получаемых матриц [72]. Однако в целом данный метод можно успешно применять для случая многих частиц произвольной формы, ориентированных случайным образом, а так же для частиц с достаточно большим размерным параметром. Отметим, что в случае осесимметричных частиц поверхностные интегралы сводятся к контурным, что существенно упрощает задачу. В связи с этим метод Т-матриц, как правило, применяется для расчётов характеристик однородных осесимметричных частиц.

Метод Т-матриц применим к задачам с подложкой, однако в данном случае накладываются существенные ограничения на форму тела и на расстояние,

на которое оно может быть удалено от подложки. Похожие трудности возникают и при решении задач с подложкой с помощью эффективного метода Галеркина [27]. Это затрудняет вычисления и делает невозможным решение ряда задач, в число которых входит и задача дифракции на вытянутых nanoчастицах, расположенных на подложке. В свободном же пространстве в задачах дифракции на плазмонных структурах метод Т-матриц способен обеспечить требуемую точность вычислений. Он был успешно применен к ряду задач плазмоники, включая моделирование задач рамановской спектроскопии (Surface-Enhanced Raman Spectroscopy, SERS) [36]. Ежегодно публикуются отчеты о развитии и приложениях метода Т-матриц[92].

Разложение поля в ряд по сферическим мультиполям с источником в центре сферы, как в приведенном методе Т-матриц, или в теории Ми – далеко не единственный способ построения решения краевой задачи дифракции. Существует целая группа методов, носящая название **обобщенные методы мультиполей** (Generalized Multipole Technique, GMT), в которых для разложения используется множество разнообразных источников, локализованных в различных местах. В основе таких подходов, по сути, лежит метод неортогональных рядов [27]. Единственным ограничением на поле источника является то, что оно должно удовлетворять соответствующему волновому уравнению. Система источников при этом, как правило, должна быть полна и замкнута на поверхности рассеивателя. Неизвестные коэффициенты разложения также находятся с помощью подстановки внешних полей и полей источников в граничные условия на поверхности рассеивателя. Для этого могут быть выбраны различные способы. В частности, это может быть аппроксимация в дискретном наборе точек на поверхности (метод поточечной сшивки, или метод коллокаций). Другим способом является поверхностное интегрирование, как в методе Т-матриц.

Под общим названием GMT можно объединить следующие подходы: метод множественных мультиполей (ММР), метод дискретных источников (МДИ, или DSM), метод вспомогательных источников (MAS) и методы Ясууры[34]. В зависимости от метода варьируется и степень точности вычислений, и сложность практической реализации, и возможность оценки корректности полученного решения. Наиболее популярной из этих методик является ММР, возможно, в силу доступности вычислительных программ для ЭВМ. Их всех объединяет изложенная концепция GMT, не накладывающая существенных

ограничений на вид источников, их расположение внутри рассеивателя и способ численного решения полученной задачи. Применительно к учету эффектов нелокальности данные методы обладают тем преимуществом, что в их рамках возможно выбрать класс таких источников, которые позволяют эффективно моделировать продольное поле в плазмонной среде в соответствии с теорией обобщенного нелокального оптического отклика, либо с гидродинамической теорией.

Популярность таких методик не очень велика (по сравнению с популярностью прямых объемных методов, о которых пойдет речь в следующем пункте), однако интерес к ним в настоящее время возрастает в связи с их потенциально широкой сферой применимости к решению тех задач, которые не решаются, либо решаются со значительными затруднениями в рамках других подходов [38]. Круг таких задач уже был обозначен: это задачи дифракции с учетом подложки, задачи дифракции на плазмонных структурах с учетом ЭНЛ, задачи дифракции на сильно вытянутых тонких рассеивателях, и другие задачи нанооптики и плазмоники.

### 1.5.3 Объемные методы

Прежде, чем рассматривать наиболее популярные сеточные подходы, обратимся к методу **дискретной дипольной аппроксимации** (Discrete Dipole Approximation, DDA), в рамках которого хотя и используются дипольные источники, но при этом его нельзя отнести к семейству GMT. При этом данный метод также позволяет рассматривать дифракцию плоской электромагнитной волны на частицах произвольной формы. Дело в том, что его концепция предусматривает представление частицы в виде трехмерной совокупности диполей на кубической сетке. Каждый диполь характеризуется комплексной поляризумостью, которая связана с комплексным показателем преломления материала и количеством диполей в единице объёма. Полное электрическое поле в некоторой рассматриваемой точке связано с поляризумостью, складывается из поля падающей волны и вклада от остальных диполей и может быть найдено с помощью схем, описанных, например, в [23]. Таким образом, данный метод является объёмным методом.

В рамках DDA учитывается взаимодействие между всеми диполями, зависящее от расстояний между ними. Для получения сходящегося решения необходимо задать начальное значение дипольного момента, и решать полученные уравнения итерационными методами. Данный метод является достаточно популярным, и по меньшей мере одна из его реализаций является общедоступной и представляет собой программный комплекс DDA-SI в среде MATLAB, способный осуществлять вычисления с учётом влияния подложки[93].

При применении DDA к расчёту рассеивающих характеристик плазмонных структур на расстояниях, близких к поверхности, проявляется рябь, затрудняющая анализ поведения ближнего поля. Причина её возникновения заключается в дискретных диполях, которые используются для моделирования рассеивателя. Кроме того, по тем же причинам в рамках данного подхода затруднено моделирование продольных волн внутри частицы, и, следовательно, учет эффекта нелокальности.

Наиболее же широко распространенным методом решения граничных задач дифракции на плазмонных структурах является **метод конечных разностей во временной области** (Finite Difference in Time Domain, FDTD) [28]. Он позволяет рассматривать несферические и неоднородные частицы, полностью дискретизируя тот объём пространства, в котором они заключаются.

Базовой ячейкой дискретизации пространства в рамках FDTD является ячейка Йе, которая является элементом двух смыкающихся сеток. В узлах одной из сеток неизвестны компоненты вектора напряженности электрического поля **E**, в узлах другой неизвестны компоненты вектора напряженности магнитного поля **H**. Для представления пространственной и временной производных, входящих в уравнения Максвелла, используется их разностная аппроксимация. На расстояние между узлами объёмной сетки накладывается ограничение: оно должно быть меньше длины волны падающего поля. Поочередно находя значения неизвестных **E** и **H** на каждом временном слое, определяется неизвестное значение поля [94]. Поле в дальней зоне определяется через найденные значения поля в ближней зоне с помощью специального преобразования.

Преимуществом данного метода является возможность исследования неоднородных частиц, поскольку в каждом узле объёмной сетки значения материальных характеристик среды  $\epsilon, \mu$  могут отличаться. Кроме того, решение задачи осуществляется последовательно, так как между собой связаны

только соседние узлы. Это позволяет избежать процедуры составления и обращения большой матрицы, что считается одним из главных преимуществ метода. Однако при расчёте плазмонных структур и, в частности, при моделировании эффекта плазмонного резонанса с помощью FDTD могут возникнуть артефакты в виде «лестницы», связанные с необходимостью использования структурированной кубической сетки и с ее недостаточной детализацией [95]. Кроме того, следует отметить характерную немонотонность схем FDTD на основе ячейки Йе, а также возникающие в рамках данного подхода численную анизотропию и численную дисперсию [28; 96].

Возникают и определённые сложности при применении данного метода к задачам с учётом подложки. Поскольку необходимо дискретизировать конечный объём пространства, без специальных модификаций метода невозможно обеспечить выполнение граничных условий всюду на бесконечной поверхности раздела сред, что по сути означает решение задачи, которая не эквивалентна исходной.

Своё место в вычислительной электродинамике занимает и классический **метод конечных элементов** (Finite Elements Method, FEM). Он также позволяет исследовать рассеивающие характеристики частиц сложных форм. В отличие от метода FDTD, в котором объём, занимаемый частицей, аппроксимируется кубической сеткой, в методе FEM существуют гибкие возможности для дискретизации пространства с помощью множества элементов различной формы[29; 94]. В итоге определяются неизвестные значения поля либо в узлах, либо на ребрах решётки.

Реализация FEM приводит к матричным уравнениям с сильно разреженными матрицами, и позволяет находить решение с высокой степенью точности, что может быть полезным при исследовании свойств таких наноструктур, которые ещё не были получены лабораторным путём. Применительно к плазмонике, FEM, в отличие от FDTD, способен обеспечить требуемую точность вычислений, поскольку допускает использование неструктурных сеток. Однако его прямое применение к плазмонным структурам может вызвать трудности, связанные с заданием области[97]. Более того, он, как и FDTD, не предоставляет возможности напрямую оценить ошибку, допущенную при вычислениях. Особенности применения FEM к плазмонным структурам, в том числе с учетом ЭНЛ, обсуждаются, в частности, в работах [24; 98].

Учет ЭНЛ в рамках приведенных сеточных подходов осложняется тем, что безразмерное волновое число продольных волн  $k_L a$ , как будет показано в главе 3, п. 3.1.3, может составлять десятки единиц, что приводит к необходимости введения очень мелких сеток. При этом размер одной сеточной ячейки в данном случае ограничен снизу и не может быть намного меньше, чем длина волны Ферми, которая, например, для золота составляет  $\lambda_F = 0.5\text{нм}$ . Поэтому в случае сред со значительным влиянием эффектов пространственной дисперсии максимально допустимой дискретизации может оказаться недостаточно для достижения требуемой точности результата [99; 100].

Таким образом, в целом в силу дискретизации объёма подобные методики не всегда подходят для решения задачи дифракции на плазмонных структурах и корректного моделирования их резонансных свойств, что в особенности относится к задачам с учетом ЭНЛ. Применение классических объёмных методов к описанию плазмонных структур и моделированию их резонансных свойств сопряжено с рядом трудностей, которые достаточно сложно преодолеть в рамках какой-либо дискретизации объёма пространства и связанных с этим ограничений.

Что касается современных полностью квантовых подходов, то их основным недостатком являются крайне высокие требования к вычислительным ресурсам, что приводит к большим сложностям в моделировании структур с размерами даже порядка 1нм. Тем не менее, отдельно стоит отметить бурное развитие данного класса методов благодаря их высокой степени точности. В настоящее время для некоторых конкретных задач, например, для задач с трансляционной инвариантностью, удалось применить TDDFT для анализа структур достаточно больших размеров – до 10нм, однако даже в этом случае в модели необходимо рассматривать очень большое количество электронов [37; 101; 102].

## 1.6 Выводы

В случае рассмотрения однородных плазмонных частиц наиболее подходящими являются поверхностно-ориентированные вычислительные методы [18;

[26]. Это связано с тем, что учет эффекта нелокальности приводит к необходимости рассмотрения решения уравнения Гельмгольца с волновым числом существенной величины, на порядок превышающим волновое число поперечных полей. Большинство прямых методов ограничено дискретизацией сетки, которая составляет около  $0.2\text{nm}$ , но в случае ЭНЛ эта дискретизация может оказаться недостаточной для достижения требуемой точности результата. Дело в том, что в этом особом случае размер ячейки сетки определяется длиной волны Ферми внутри частицы, которая, например, для золота составляет  $\lambda_F = 0.5\text{nm}$ . При этом, если говорить об альтернативных строгих подходах, основанных на квантовой теории, то при всех преимуществах для их использования требуются обширные вычислительные ресурсы даже для анализа свойств одиночных частиц нанометрового масштаба [37], что также приводит к необходимости развития альтернативных численных методов.

Среди полуаналитических поверхностных методов определенными преимуществами обладает МДИ [33; 103]. Он позволяет в аналитическом виде получать как ближнее, так и дальнее поле, эффективно решая задачу одновременно для всего набора внешних возбуждений. Уникальной особенностью метода является то обстоятельство, что он дает возможность получить апостериорную оценку точности найденного решения. Это позволяет контролировать реальную сходимость приближенного решения к точному. Поскольку целью дальнейших исследований является анализ характеристик рассеяния именно однородными плазмонными частицами с учетом ЭНЛ, в том числе в средах с подложкой, в качестве метода исследования был выбран метод дискретных источников [18; 39].

## Глава 2. Гибридная схема метода дискретных источников

### 2.1 Основы метода дискретных источников

Для корректного анализа рассеяния электромагнитных волн локальнымиnanoструктурами необходимо рассматривать строго поставленную граничную задачу теории дифракции [103]. Эта задача представляет собой классическую задачу математической физики для системы уравнений в частных производных, которая в общем случае записывается в виде:

$$L(u) = 0 \text{ в } D_e = R^3 \setminus \overline{D_i} \quad (2.1)$$

$$l(u) + l(u^0) = 0 \text{ на } \partial D_i \quad (2.2)$$

$$\text{условие излучения для } u \text{ на бесконечности} \quad (2.3)$$

Здесь  $L$  – оператор граничной задачи, который в случае акустических волн является оператором Гельмгольца, и который представляет из себя систему уравнений Максвелла в электромагнитном случае;  $l$  – граничный оператор;  $\partial D_i$  – гладкая замкнутая поверхность, которая является границей односвязной ограниченной области  $D_i$ ;  $u^0$  – поле внешнего возбуждения.

Идея,ложенная в основу рассматриваемого способа построения классического решения данной задачи дифракции, носит название концепции квазирешения. Её суть заключается в представлении приближенного решения в виде суперпозиции известных решений специально выбранных вспомогательных задач. Вспомогательные задачи выбираются таким образом, чтобы системы их частных решений аналитически удовлетворяли уравнению (2.1) и условиям излучения на бесконечности (2.3), и при этом были полны и замкнуты на поверхности  $\partial D_i$ . Обозначим приближенное решение, построенное в виде суперпозиции частных решений вспомогательных задач, за  $u^\delta$ . Тогда, если граничное условие на поверхности рассеивателя

$$\|l(u^\delta) + l(u^0)\| \leq \delta \quad (2.4)$$

приближенно выполняется в соответствующей функциональной норме, и исходная граничная задача дифракции (2.1)-(2.3) имеет единственное решение, то

для приближенного решения справедлива оценка [104]

$$\|u - u^\delta\|_{C(d)} = O\left(\|l(u^\delta) + l(u^0)\|_{L^2(\partial D_i)}\right), \quad (2.5)$$

обеспечивающая близость приближенного решения к точному всюду во внешней области  $D_e$  в равномерной метрике. Здесь  $d$  – любой компакт в  $D_e$ . В силу этого соотношения для сходимости приближенного решения к точному в  $D_e$  достаточно аппроксимировать граничное условие в норме  $L^2$  на поверхности  $\partial D_i$  с заданной степенью точности. Таким образом, исходная задача (2.1)-(2.3) сводится к задаче аппроксимации поля внешнего возбуждения на границе рассеивателя в норме пространства  $L^2(\partial D_i)$ . Для её решения необходимо определить неизвестную  $u^\delta$ , что можно осуществить с помощью реализации соответствующего численного алгоритма.

Необходимо отметить, что чем ближе рассеивающий объект располагается к источникам поля внешнего возбуждения, тем точнее требуется аппроксимировать граничные условия на поверхности рассеивателя (2.2). То же самое касается и случая построения решения для рассеянного поля вблизи рассматриваемой наноструктуры – в так называемой ближней зоне. Точное выполнение граничных условий является крайне важным для решения задач в ближней зоне (в том числе – для моделирования спектра характеристических потерь энергии электронами, EELS), что приводит к существенному увеличению времени, необходимому для компьютерных расчетов. При этом в случае анализа диаграммы рассеяния в задачах дифракции в дальней зоне появляется возможность избежать требования точного выполнения граничных условий, что обеспечивает высокую производительность методов, основанных на концепции квазирешения.

Одним из наиболее эффективных инструментов для построения квазирешения  $u^\delta$  является численная схема метода дискретных источников (МДИ) [33]. В основе МДИ лежит представление приближенного решения в виде конечной суперпозиции полей дискретных источников (ДИ), в качестве которых в векторной задаче выбираются электрические и магнитные излучающие мультипольные источники. Такое представление удовлетворяет условиям, наведенным на  $u^\delta$ , а именно аналитически обеспечивает выполнение уравнений Максвелла (в случае электромагнитных волн) и условий излучения на бесконечности. При этом, в соответствии с изложенным выше, система ДИ должна быть полна и замкнута на поверхности рассеивателя, и одним из ключевых

преимуществ метода дискретных источников является наличие явной схемы построения таких систем. Неизвестные амплитуды ДИ определяются методами минимизации невязки из условия (2.4).

Среди прочих преимуществ МДИ по сравнению с подобными ему подходами, изложенными в главе 1, можно выделить следующие [34; 105]:

- На выбор вида полей ДИ накладываются минимальные ограничения.
- Расположение ДИ возможно как на оси симметрии объекта или в прилегающей к ней части комплексной плоскости, так и на вспомогательной поверхности, форма которой определяется формой рассеивателя.
- Возможность существенного повышения производительности вычислений за счет учёта аксиальной симметрии рассеивателя.
- В целом низкие требования к количеству вычислительных операций при решении задач. При этом численные алгоритмы на основе МДИ также допускают эффективное распараллеливание при их программной реализации, что особенно важно при решении полностью трехмерных задач.
- Возможность проверки сходимости решения с помощью проведения апостериорной оценки погрешности.

В частности, минимальные ограничения на выбор полей ДИ позволяют выбирать эти поля так, чтобы аналитически удовлетворялись различные дополнительные условия. Наличие этих условий и их форма зависит от конкретной задачи. В качестве примера можно привести условия сопряжения полей на границе раздела сред в случае слоистой среды. Другим примером является учет влияния продольных полей на рассеивающие свойства плазмонных наноструктур с помощью ввода соответствующих дискретных источников (см. пункт 2.5 настоящей главы).

Разработка строгого вычислительного подхода на основе МДИ с учетом таких полей является актуальной задачей настоящей работы. Кроме того, данный подход должен позволять проводить анализ полностью трехмерных задач как для одиночных частиц несферической формы, так и для структур из нескольких частиц, в том числе в присутствии слоистой среды. В связи с этим в настоящей главе для решения трехмерных задач дифракции на плазмонных структурах предлагается новая модификация МДИ, получившая название гибридной схемы. Ниже приведены теоретические основы гибридной схемы МДИ,

обсуждаются ее особенности, и подробно освещается процедура учета ЭНЛ в ее рамках.

## 2.2 Задачи для частиц с размерами менее 10 нм

Рассмотрению автором электромагнитных задач дифракции на плазмонныхnanoструктурах в слоистых средах и при различных видах внешнего возбуждения предшествовало рассмотрение электромагнитной задачи дифракции плоской волны на одиночной наночастице масштабами от 1 до 10 нанометров как в локальном, так и в нелокальном случае. На примере данной задачи была рассмотрена, теоретически обоснована и проанализирована гибридная схема МДИ, предложенная для анализа наночастиц малых размеров, проведено интегрирование учета эффекта нелокальности в математическую модель, отработаны все вычислительные тонкости метода дискретных источников. Рассматриваемая модель является одним из основных результатов настоящей работы и служит отправной точкой для всех последующих построенных моделей и реализации единого программного комплекса на их основе, а также может послужить отправной точкой в исследованиях, включающих более сложные модели кластеров частиц в слоистых средах. Осветим теоретические основы развитого подхода.

Для этого запишем математическую постановку простейшей трехмерной задачи дифракции электромагнитной волны на локальном однородном рассеивателе в однородной диэлектрической среде без учета эффектов пространственной дисперсии на основе уравнений (1.21)–(1.24) и стандартных граничных условий (1.8), (1.10):

$$\operatorname{rot} \mathbf{H}_\zeta(M) = jk \varepsilon_\zeta \mathbf{E}_\zeta(M), \quad (2.6)$$

$$\operatorname{rot} \mathbf{E}_\zeta(M) = -jk \mu_\zeta \mathbf{H}_\zeta(M), \quad M \in D_\zeta \quad (2.7)$$

$$\mathbf{E}_0(M) = \mathbf{E}_0^S(M) + \mathbf{E}_0^0(M), \quad (2.8)$$

$$\hat{\mathbf{n}}_P \times [\mathbf{E}_i(P) - \mathbf{E}_0^S(P)] = \mathbf{n}_P \times \mathbf{E}_0^0(P), \quad (2.9)$$

$$\hat{\mathbf{n}}_P \times [\mathbf{H}_i(P) - \mathbf{H}_0^S(P)] = \mathbf{n}_P \times \mathbf{H}_0^0(P), \quad P \in \partial D_i \quad (2.10)$$

которые дополним условием излучения на бесконечности:

$$\lim_{r \rightarrow \infty} r \cdot (\sqrt{\epsilon_0} \mathbf{E} \times \frac{\mathbf{r}}{r} - \sqrt{\mu_0} \mathbf{H}) = 0, \quad r = |M| \rightarrow \infty, \quad M \in D_0. \quad (2.11)$$

Здесь  $\zeta$  – индекс среды, причем  $\zeta = 0$  соответствует вакууму с  $\epsilon_0 = 1$  и полями  $\mathbf{E}_0$ ,  $\mathbf{H}_0$ , а среда с индексом  $\zeta = i$  соответствует материалу рассеивателя с полями  $\mathbf{E}_i$ ,  $\mathbf{H}_i$  и комплексным  $\epsilon_i$ , определенным из экспериментальных данных. Кроме того,  $k = \frac{\omega}{c} = 2\pi/\lambda$  – волновое число в вакууме,  $\mathbf{E}_0^S$ ,  $\mathbf{H}_0^S$  – рассеянное поле в вакууме,  $\mathbf{E}_0^0$ ,  $\mathbf{H}_0^0$  – поле внешнего возбуждения,  $\hat{\mathbf{n}}_P$  – внешняя нормаль к поверхности  $\partial D_i$  в точке  $P$ .

Согласно концепции квазирешения, в рамках МДИ классическое решение задачи (2.6)-(2.11) – рассеянное поле вне частиц и полное поле внутри каждой частицы – строится в виде суперпозиции полей дискретных источников, система которых полна и замкнута в пространстве  $L_\tau^2$  функций, касательных к гладкой поверхности  $\partial D_i$ , удовлетворяющих уравнениям Максвелла для внутренней и внешней задачи, и дополнительно удовлетворяющих условиям излучения для внешней задачи. Такое представление обосновано в рамках хорошо разработанной теории МДИ, основополагающими элементами которой являются теоремы о полноте некоторых систем линейно независимых функций. В качестве примеров можно привести систему метагармонических функций Векуа с носителем в одной точке, систему электрических и магнитных мультипольных источников, носителем которых является отрезок оси вращения частицы, либо систему электрических и магнитных дипольных источников, расположенных на вспомогательной поверхности внутри частицы. Каждая из этих систем в силу своей полноты позволяет аппроксимировать любое внешнее поле на поверхности частицы определенной формы. В частности, в осесимметричных задачах, допускающих сведение исходной задачи к набору одномерных задач по аппроксимации Фурье-гармоник  $m$  внешнего поля при его разложении в ряд по азимутальному углу  $\varphi$ , особенно удобно пользоваться мультипольными источниками на оси, тогда как в полностью трехмерных задачах для неосесимметричных структур, как правило, используются дипольные источники на вспомогательной поверхности [33–35]. Важно отметить, что во всех рассмотренных случаях вид ДИ упрощается вместе с усложнением структуры носителя ДИ, и наоборот – более простая структура носителя приводит к более сложному виду ДИ.

Как следует из сказанного, у каждой из вычислительных схем присутствуют некоторые ограничения. Способ исследования осесимметричных структур с помощью решения одномерных задач для каждой из  $m$  гармоник Фурье является наиболее быстрым, но его область применимости ограничивается телами вращения. Более того, его применение также затруднено в случае задачи дифракции на неосесимметричном кластере осесимметричных частиц, в особенности в средах с подложкой, а также в задачах EELS [106]. Напротив, использование полностью трехмерных схем позволяет преодолеть эти ограничения, но при этом в общем случае существенно снижается производительность алгоритмов благодаря необходимости спивки полей на всей поверхности рассеивателя и составлению систем линейных уравнений больших размерностей [35]. В ряде трехмерных задач, в которых встречаются тонкие сильно вытянутые частицы, между близкорасположенными ДИ может дополнительно возникать численная линейная зависимость, которая также приводит к трудностям при построении решения.

На этом фоне для построения эффективных алгоритмов, обеспечивающих получение корректных результатов, появляется потребность в учете ряда особенностей конкретных задач, в число которых входит не только форма частиц, но и их размер, количество, расположение друг относительно друга, тип внешнего возбуждения, а также наличие подложки в среде. Поскольку в области квантовой наноплазмоники преимущественно используются частицы с характерными размерами порядка 10 нанометров, представляется целесообразным в первую очередь учесть именно эту особенность при решении задачи (2.6)-(2.11).

Для этого проанализируем одну из наиболее распространенных постановок данной задачи – а именно, дифракцию поля плоской линейно поляризованной волны на однородном осесимметричном рассеивателе в вакууме. Начало декартовой системы координат  $\{x,y,z\}$  поместим в центре симметрии частицы так, чтобы ось  $z$  совпала с осью вращения частицы (в случае, если осей вращения несколько, выберем большую из них). Для удобства дальнейшего изложения также введем соответствующую сферическую систему координат  $\{R,\theta,\phi\}$ . Пусть волна распространяется под углом  $\pi - \Theta_0$  к оси  $z$ . Тогда поле внешнего возбуждения в случае Р- или S-поляризованной волны принимает

вид [32; 107]:

$$\begin{aligned}\mathbf{E}_0^{0,P}(M) &= (\mathbf{e}_x \cos \theta_0 \cos \varphi_t + \mathbf{e}_y \cos \theta_0 \sin \varphi_t + \mathbf{e}_z \sin \theta_0) \cdot \boldsymbol{\gamma}_0, \\ \mathbf{H}_0^{0,P}(M) &= (\mathbf{e}_x \sin \varphi_t - \mathbf{e}_y \cos \varphi_t) \cdot \mathbf{n}_0 \cdot \boldsymbol{\gamma}_0, \\ \mathbf{E}_0^{0,S}(M) &= (-\mathbf{e}_x \sin \varphi_t + \mathbf{e}_y \cos \varphi_t) \cdot \boldsymbol{\gamma}_0, \\ \mathbf{H}_0^{0,S}(M) &= (\mathbf{e}_x \cos \theta_0 \cos \varphi_t + \mathbf{e}_y \cos \theta_0 \sin \varphi_t + \mathbf{e}_z \sin \theta_0) \cdot \mathbf{n}_0 \cdot \boldsymbol{\gamma}_0.\end{aligned}\tag{2.12}$$

Здесь  $M$  – точка с декартовыми координатами  $x = R \sin(\theta) \cos(\varphi)$ ,  $y = R \sin(\theta) \sin(\varphi)$ ,  $z = R \cos(\theta)$ , в которой вычисляется значение поля,  $\varphi_t$  – угол поворота плоскости падения волны,  $n_0 = \sqrt{\epsilon_0 \mu_0}$  – показатель преломления диэлектрика с диэлектрической проницаемостью  $\epsilon_0$  и магнитной проницаемостью  $\mu_0$ , причем в вакууме  $\epsilon_0 = \mu_0 = 1$ ,  $\boldsymbol{\gamma}_0 = \exp\{-jk_0(x \sin \theta_0 \cos \varphi_t + y \sin \theta_0 \sin \varphi_t - z \cos \theta_0)\}$ . На рассматриваемых нами пространственных масштабах внешнее возбуждение такого типа легко получить, например, с помощью традиционного лазера оптического диапазона.

Известно, что экспоненциальный множитель в приведенном поле плоской линейно поляризованной волны раскладывается в ряд Фурье по азимутальным гармоникам с помощью соотношения

$$\exp(\pm j\boldsymbol{\nu} \cos \varphi) = \sum_{m=0}^{\infty} (2 - \delta_{0m})(\pm j)^m J_m(\boldsymbol{\nu}) \cos(m\varphi),\tag{2.13}$$

где  $J_m(\cdot)$  – цилиндрическая функция Бесселя порядка  $m$  [105]. Отметим, что в параметр  $\boldsymbol{\nu}$  явным образом входят характерные размеры частицы, если расчетная точка  $M(x,y,z)$  находится на ее поверхности. Для простоты предположим, что  $\varphi_t = 0$  (плоскость падения падающей волны не вращается), и что максимальный размер частицы по оси  $x$  равен  $a$  нанометров. Тогда  $\boldsymbol{\gamma}_0 = \exp(-jk_0 a \sin \theta \sin \theta_0) \exp(jk_0 z \cos \theta_0)$ , а  $\boldsymbol{\nu} = k_0 a \sin \theta \sin \theta_0$ . Всюду далее будем называть  $a$  поперечным радиусом частицы.

Чтобы исследовать влияние поперечного размера частицы на поведение поля плоской волны, оценим ошибку при аппроксимации экспоненциального множителя  $\boldsymbol{\gamma}_0$  начальными гармониками ряда Фурье (2.13). В первую очередь отметим, что максимальная ошибка достигается при  $\sin \theta_0 = 1$ , когда угол падения составляет  $\pi/2$ . Предполагая, что  $\sin \theta$  и  $\cos m\varphi$  также принимают свои максимальные значения ( $\varphi = 0$ ), запишем  $\boldsymbol{\nu} = k_0 a$ . Далее, поскольку рассматриваемый ряд является знакопеременным, для оценки вклада начальных слагаемых будем использовать последний отброшенный член ряда. Тогда

$\lambda$ , нм	100	200	300	400	500	600	700	800	900
$a$ , нм	1.59	3.2	4.77	6.36	7.94	9.54	11.13	12.72	14.31

Таблица 1 — Оценка характеристического размера частицы  $a$ , при котором основной вклад в поле плоской линейно поляризованной волны вносят нулевая и первая гармоники Фурье

можно записать следующие соотношения:

$$\frac{2J_1(k_0a)}{J_0(k_0a)} \leq \delta_0, \quad \frac{2J_2(k_0a)}{|J_0(k_0a) - 2jJ_1(k_0a)|} \leq \delta_1, \quad (2.14)$$

где  $\delta_m$  – заданная точность аппроксимации экспоненциального множителя  $\gamma_0$  нулевой гармоникой ряда Фурье ( $m = 0$ ) либо нулевой и первой гармониками ( $m = 1$ ). Выбирая величину  $\delta_0 = 10\%$ , и предполагая, что длина волны внешнего возбуждения находится в видимом диапазоне и составляет, например, 532нм, получим оценку на характерный размер рассеивателя  $a \leq 8$ нм. При этом оказывается, что  $\delta_1 = 0.2\%$ . Исходя из данных предположений, для различных длин волн могут быть получены оценки на размер рассеивателя, представленные в таблице 1. Таким образом, в рассматриваемых пространственных масштабах основной вклад в экспоненту поля плоской линейно поляризованной волны вносят нулевая и первая гармоники ряда Фурье [39]. Наконец, обращая внимание на два частных случая  $\sin \theta_0 = 0$  и  $\sin \theta_0 = 1$ , отметим, что в первом из них вообще нет необходимости раскладывать поле по гармоникам, но при этом оно по-прежнему обязательно будет зависеть от  $\varphi$  как  $\cos \varphi$  и  $\sin \varphi$  в силу наличия орт  $\mathbf{e}_x, \mathbf{e}_y$  в (2.12), а во втором роль играют все гармоники, присутствующие в разложении экспоненты, включая нулевую, которая вносит основной вклад.

Следовательно, возможность аппроксимации полей, зависящих лишь от нулевой и первой гармоник по  $\varphi$ , играет решающую роль при построении эффективных вычислительных моделей для частиц указанных размеров. Как будет показано в главе 3, в качестве таких полей можно рассматривать не только поле плоской линейно поляризованной волны, но и поле точечного релятивистского заряда, движущегося равномерно и прямолинейно, которое рассматривается в некоторых задачах электронной микроскопии.

### 2.3 Особенности гибридной схемы

Покажем, что учет данной особенности задач квантовой наноплазмоники позволяет построить новую вычислительную схему метода дискретных источников для полностью трехмерного случая. Для этого введем векторный потенциал электромагнитного поля как

$$\mu_\zeta \mathbf{H}(M) = -\operatorname{rot} \mathbf{A}(M).$$

Тогда из стандартных уравнений Максвелла для установившихся колебаний легко получить следующее уравнение Гельмгольца [108]:

$$(\nabla^2 + k_\zeta^2) \mathbf{A} = 4\pi\mu\mathbf{J}/c, \quad (2.15)$$

где  $k_\zeta^2 = k\epsilon_\zeta\mu_\zeta$  – волновое число в среде с индексом  $\zeta$ . Будем строить решение задачи (2.6)-(2.11) в виде решений соответствующих уравнений Гельмгольца для векторных потенциалов в каждой из сред. В частности, во внешней области  $D_0$  будем строить поля  $\mathbf{E}_0^S$ ,  $\mathbf{H}_0^S$  на основе «внешних» источников, записанных с помощью фундаментального решения

$$\Psi(M, M_n) = \exp(-jk_0 R_{MM_n})/R_{MM_n}, \quad \mathbf{A}(M, M_n) = \Psi(M, M_n) \mathbf{v}_i, \quad (2.16)$$

или, что то же самое с точностью до множителя

$$\tilde{\Psi}(M, M_n) = h_0^{(2)}(k_0 R_{MM_n})$$

где без ограничения общности используется введенная ранее декартова система координат,  $M$  – точка вычисления поля источника,  $M_n$  – точка, в которой расположен источник,  $\mathbf{v}_i$  – произвольный единичный вектор, вдоль которого направлен дипольный момент источника с потенциалом  $\mathbf{A}(M, M_n)$ , а  $R_{MM_n}^2 = (x - x_n)^2 + (y - y_n)^2 + (z - z_n)^2$ ,  $h_0^{(2)}(\cdot)$  – сферическая функция Ханкеля второго рода нулевого порядка. Аналогичным образом строятся выражения для полей  $\mathbf{E}_i$ ,  $\mathbf{H}_i$  с помощью системы «внутренних» источников на основе фундаментального решения уравнения Гельмгольца во внутренней области без особенности:  $\sin(k_i R_{MM_n})/R_{MM_n}$ , или  $j_0(k_i R_{MM_n})$  в терминах сферической функции Бесселя нулевого порядка.

Обратимся к теории метода дискретных источников. Поскольку в дальнейшем мы будем работать как с электрическими, так и с магнитными

источниками, сформулируем и докажем теорему о полноте системы электрических и магнитных дипольных источников на некоторой незамкнутой поверхности внутри частицы. В качестве примера рассмотрим цилиндрическую поверхность  $S \subset D_i$  с радиусом  $\rho_S$  в качестве носителя множества ДИ.

**Теорема 1.** *Пусть электрические и магнитные дипольные ДИ расположаются в точках  $M_n \in S$ , множество которых  $\{M_n\}_{n=1}^\infty$  таково, что  $\overline{\{M_n\}_{n=1}^\infty} = S$ , т. е. всюду плотно на  $S$ . Пусть, кроме того, ДИ в каждой точке  $M_n$  ориентированы вдоль пары векторов  $\mathbf{v}_1(M_n), \mathbf{v}_2(M_n)$ , тангенциальных к поверхности в данной точке и которые образуют прямоугольный базис вместе с вектором внешней нормали  $\mathbf{n}$  к  $S$ . Тогда указанная система дискретных источников полна и замкнута в пространстве  $L_\tau^2(\partial D_i)$ .*

*Доказательство.* Выберем произвольную точку  $M_n$  из указанного множества. Поля расположенных в ней электрических и магнитных дипольных ДИ, определенные через фундаментальное решение уравнения Гельмгольца в однородной среде  $\Psi(M, M_n)$ , имеют вид

$$\mathbf{W}_n = \frac{j}{k\varepsilon_i\mu_i} \operatorname{rot} \operatorname{rot} \{\Psi(M, M_n) \mathbf{v}_p(M_n)\}, \mathbf{V}_n = -\frac{1}{\mu_i} \operatorname{rot} \{\Psi(M, M_n) \mathbf{v}_p(M_n)\}, p = 1, 2.$$

Здесь  $M \in D_i$ . В соответствии с утверждением теоремы и существующей схемой построения полных систем ДИ [105] надо доказать, что  $\forall n \in \mathbf{N}$  и  $\forall \mathbf{J} \in L_\tau^2(\partial D_i)$  из выполнения системы уравнений замкнутости

$$\langle \mathbf{W}_n, \mathbf{J} \rangle_{L^2} = 0, \quad \langle \mathbf{V}_n, \mathbf{J} \rangle_{L^2} = 0 \tag{2.17}$$

следует равенство  $\mathbf{J}$  нулю почти всюду в  $L_\tau^2(\partial D_i)$ :  $\mathbf{J} \propto 0$ .

Из (2.17) и соотношения  $\overline{\{M_n\}_{n=1}^\infty} = S$  следует, что для  $\forall M \in S, P \in \partial D_i$  справедливо

$$\begin{aligned} \int_{\partial D_i} \operatorname{rot} \operatorname{rot}_P \{\Psi(P, M) \mathbf{v}_p(M)\} \cdot \mathbf{J}(P) d\sigma_P &= 0, \\ \int_{\partial D_i} \operatorname{rot}_P \{\Psi(P, M) \mathbf{v}_p(M)\} \cdot \mathbf{J}(P) d\sigma_P &= 0. \end{aligned}$$

Используя известные формулы векторного анализа, перепишем эти соотношения в виде

$$\begin{aligned} \mathbf{v}_p(M) \cdot \operatorname{rot}_M \operatorname{rot}_M \int_{\partial D_i} \psi(P, M) \mathbf{J}(P) d\sigma_P &= 0, \\ \mathbf{v}_p(M) \cdot \operatorname{rot}_M \int_{\partial D_i} \psi(P, M) \mathbf{J}(P) d\sigma_P &= 0. \end{aligned} \quad (2.18)$$

Теперь введем в рассмотрение функции, по способу своего построения удовлетворяющие уравнениям Максвелла в  $D_i$  и условиям излучения на бесконечности:

$$\begin{aligned} \mathbf{E}(M) &= \frac{j}{k\varepsilon_i\mu_i} \operatorname{rot}_M \operatorname{rot}_M \int_{\partial D_i} \psi(P, M) \mathbf{J}(P) d\sigma_P = 0, \\ \mathbf{H}(M) &= -\frac{1}{\mu_i} \operatorname{rot}_M \int_{\partial D_i} \psi(P, M) \mathbf{J}(P) d\sigma_P = 0, \quad M \in D_i. \end{aligned}$$

Эти функции в силу (2.18) также удовлетворяют условиям на  $S$

$$\begin{aligned} \mathbf{E}(M) \cdot \mathbf{v}_p(M) &= 0, \\ \mathbf{H}(M) \cdot \mathbf{v}_p(M) &= 0. \end{aligned} \quad (2.19)$$

Это значит, что компоненты  $E_{\mathbf{v}_p}, H_{\mathbf{v}_p}$  обращаются в ноль в произвольной точке  $M \in S$ . Кроме того, по построению  $\operatorname{div}\mathbf{E} = \operatorname{div}\mathbf{H} = 0$ . Рассмотрим локальную декартову систему координат с базисом  $\{\mathbf{v}_1, \mathbf{v}_2, \mathbf{n}\}$ . Тогда из равенства дивергенций нулю непосредственно следует  $\frac{\partial \mathbf{E}(M)}{\partial n}, \frac{\partial \mathbf{H}(M)}{\partial n}$  на  $S$ . Кроме того, из уравнений Максвелла

$$\operatorname{rot}\mathbf{H} = jk\varepsilon\mathbf{E}, \quad \operatorname{rot}\mathbf{E} = -jk\mu\mathbf{H}$$

с учетом (2.19) вытекает

$$\begin{aligned} \frac{\partial \mathbf{E}_n}{\partial \mathbf{v}_2} &= \frac{\partial \mathbf{E}_{\mathbf{v}_2}}{\partial \mathbf{n}}, \quad \frac{\partial \mathbf{E}_{\mathbf{v}_2}}{\partial \mathbf{n}} = \frac{\partial \mathbf{E}_n}{\partial \mathbf{v}_1}, \quad \frac{\partial \mathbf{H}_n}{\partial \mathbf{v}_2} = \frac{\partial \mathbf{H}_{\mathbf{v}_2}}{\partial \mathbf{n}}, \quad \frac{\partial \mathbf{H}_{\mathbf{v}_2}}{\partial \mathbf{n}} = \frac{\partial \mathbf{H}_n}{\partial \mathbf{v}_1}, \\ \operatorname{rot}\operatorname{rot}\mathbf{E} &= k^2\varepsilon\mu\mathbf{E}_n, \quad \operatorname{rot}\operatorname{rot}\mathbf{H} = k^2\varepsilon\mu\mathbf{H}_n, \end{aligned}$$

что при покомпонентной записи выражений  $\operatorname{rot}\operatorname{rot}\mathbf{E} \cdot \mathbf{n}$  и  $\operatorname{rot}\operatorname{rot}\mathbf{H} \cdot \mathbf{n}$  в совокупности дает  $\mathbf{E} \cdot \mathbf{n} = 0, \mathbf{H} \cdot \mathbf{n} = 0$ . Таким образом, нормальные компоненты  $\mathbf{H}_n(M), \mathbf{E}_n(M)$  к данной поверхности  $S$  и производные  $\frac{\partial \mathbf{E}(M)}{\partial n}, \frac{\partial \mathbf{H}(M)}{\partial n}$  на  $S$  будут

также равны нулю. Равенство нулю компонент  $\mathbf{E}_{vp}, \mathbf{E}_n, \mathbf{H}_{vp}, \mathbf{H}_n$  в произвольной точке  $M \in S$  означает, что всюду на поверхности  $S$  выполняется  $\mathbf{E} = 0, \mathbf{H} = 0$ .

Покажем, что соотношения  $\mathbf{E}(M) = 0, \mathbf{H}(M) = 0$  справедливы во всей области  $D_i$ . Для этого запишем задачу Коши для уравнения Гельмгольца:

$$\begin{cases} (\Delta + k^2)\mathbf{E} = 0 \text{ всюду в } D_i, \\ \mathbf{E} = 0 \text{ на } S, \\ \frac{\partial \mathbf{E}}{\partial n} = 0 \text{ на } S. \end{cases} \quad (2.20)$$

Первое уравнение в системе (2.20) можно легко получить из уравнений Максвелла и соотношений векторного анализа. Справедливость второго и третьего уравнений установлена выше. Поставленная задача Коши однозначно разрешима и имеет только тривиальное решение  $\mathbf{E} = 0$  в некоторой окрестности поверхности  $S \subset D_i$ . Тогда, поскольку  $\mathbf{E}$  – аналитическая функция в области  $D_i$ , то  $\mathbf{E} = 0$  во всей области  $D_i$  [109].

Из полученного соотношения  $\mathbf{E}(M) = 0$  всюду в  $D_i$  следует, что

$$\operatorname{rotrot} \int_{\partial D_i} \psi(P, M) \mathbf{J}(P) d\sigma_P = 0 \text{ всюду в } D_i.$$

Согласно лемме 3.1, приведенной в работе [105], это означает  $\mathbf{J} \propto 0$  в  $L_v^2(\partial D_i)$ , что и требовалось доказать.  $\square$

Отметим, что в доказательстве теоремы нигде явным образом не используется именно незамкнутый цилиндр  $S$ . Таким образом, формулировку теоремы можно обобщить, и лишь потом уточнять тип рассматриваемой поверхности.

Проанализируем теперь поведение полей построенной системы ДИ при стремлении поперечного размера  $\rho_S = \sqrt{x_P^2 + y_P^2}$  вспомогательной поверхности к 0 [39]. Воспользуемся разложением в ряд фундаментального решения уравнения Гельмгольца  $\psi(M, P)$  по теореме сложения [105]:

$$\begin{aligned} \psi(M, P) = -jk \sum_{l=0}^{\infty} \sum_{m=-l}^l & \left( N_{lm} j_l(kR_P) P_l^m(\cos \theta_P) h_l^{(2)}(kR_M) \cdot \right. \\ & \left. \cdot P_l^m(\cos \theta_M) e^{jm(\varphi_M - \varphi_P)} \right). \end{aligned} \quad (2.21)$$

Здесь  $M \in \partial D_i, P \in S, j_l(\cdot)$  – сферические функции Бесселя,  $h_l^{(2)}(\cdot)$  – сферические функции Ханкеля второго рода,  $P_l^m(\cdot)$  – присоединенные многочлены

Лежандра,  $N_{lm} = \sqrt{(2l+1)(l-|m|)/(4\pi(l+|m|))}$  – нормировочная постоянная,  $\theta_{M,P}$  и  $\varphi_{M,P}$  – сферические координаты соответствующих точек.

При стремлении  $\rho_S$  к нулю с учётом свойств присоединённых многочленов Лежандра, выражение (2.21) примет следующую форму:

$$\Psi(M,P) = -jk \sum_{l=0}^{\infty} N_{l0} j_l(kz_P) P_l^0(1) h_l^{(2)}(kR_M) P_l^0(\cos\theta_M), \quad (2.22)$$

$$M \in \partial D_i, P \in S.$$

Поскольку пара касательных к цилиндру  $S$  векторов  $\mathbf{v}_p(M)$  представима в виде  $\mathbf{v}_1(P) = -\mathbf{e}_x \sin \varphi_P + \mathbf{e}_y \cos \varphi_P, \mathbf{v}_2(P) = \mathbf{e}_z$ , то при стремлении  $\rho_S$  к нулю ДИ необходимо ориентировать вдоль орт прямоугольной системы координат. При этом существенно изменяется структура ДИ:  $P_l^m(\cos \theta_M) \xrightarrow{\rho_S \rightarrow 0} P_l^m(1)$ . В случае  $m > 0$  это слагаемое обращается в нуль и исчезают все члены ряда (2.21) с отличным от нуля  $m$ , что хорошо видно в выражении (2.22). Таким образом, если дипольные источники располагаются на оси  $z$  частицы, они в лучшем случае могут аппроксимировать нулевую и первую гармоники Фурье внешнего поля в силу линейной независимости тригонометрической системы функций  $\cos(m\varphi)$ .

Полученные оценки подтверждаются в вычислительном эксперименте. С целью последовательности изложения соответствующие результаты будут приведены в главе 3 для конкретных частиц, см. пункт 3.1.5.

Запишем в явном виде полученную систему «внешних» ДИ с помощью векторных потенциалов. В дальнейшем эта система будет нами использоваться для решения поставленной задачи дифракции на рассеивателе в однородном пространстве:

$$\mathbf{A}_{x,n}^0 = h_0^{(2)}(k_0 R_{MM_n}) \mathbf{e}_x, \quad \mathbf{A}_{y,n}^0 = h_0^{(2)}(k_0 R_{MM_n}) \mathbf{e}_y, \quad \mathbf{A}_{z,n}^0 = h_0^{(2)}(k_0 R_{MM_n}) \mathbf{e}_z. \quad (2.23)$$

Поле каждого из «внешних» источников можно получить из векторных потенциалов по формулам:

$$\begin{aligned} \mathbf{E}_{0,\alpha}^e(M, M_n) &= \frac{j}{k\epsilon_0\mu_0} \text{rotrot} \mathbf{A}_{\alpha,n}^0, \\ \mathbf{E}_{0,\alpha}^h(M, M_n) &= \frac{1}{\epsilon_0} \text{rot} \mathbf{A}_{\alpha,n}^0, \\ \mathbf{H}_{0,\alpha}^{e,h}(M, M_n) &= \frac{j}{k\mu_0} \text{rot} \mathbf{E}_{\alpha,0}^{e,h}(M, M_n), \end{aligned} \quad (2.24)$$

где введены индексы  $e$  и  $h$  для обозначения полей электрических и магнитных источников, а численный нижний индекс у полей в левой части соответствует области пространства  $\zeta$ , в данном случае являющейся однородной внешней средой с  $\zeta = 0$ . Таким образом, в рамках предлагаемого подхода рассеянное поле представляет собой суперпозицию полей излучающих электрических и магнитных диполей. При этом в каждой точке  $M_n$  из набора  $\{M_n\}_{n=1}^N$  на оси внутри наночастицы находятся 3 взаимно ортогональных источника электрического типа и 3 взаимно ортогональных источника магнитного типа.

Отдельного рассмотрения заслуживает строгое обоснование полноты полученной системы ДИ, расположенных именно на оси симметрии. С учетом оценки вклада гармоник Фурье в поле плоской волны (2.14), для его проведения необходимо доказать следующие утверждения:

**Теорема 2.** *Пусть одиночная частица  $D_i$  – связная осесимметричная область с гладкой поверхностью  $\partial D_i \in C^{(2,\alpha)}$ , внешняя область –  $D_e = \mathbb{R}^2 \setminus \overline{D}_i$ . Обозначим ось симметрии тела как  $O_z$ . Пусть множество точек  $\{z_n\}_{n=1}^\infty$ , лежащих на оси  $z$ , имеет внутри тела хотя бы одну точку сгущения. Тогда система*

$$\mathbf{E}_{0,z}^e(M, z_n) = \frac{j}{k\epsilon_0\mu_0} \text{rotrot}\{h_0^{(2)}(k_0 R_{Mz_n}) \mathbf{e}_z\} \quad (2.25)$$

полнна в  $L_2^r(\partial D_i)$  – пространстве функций, касательных к образующей поверхности и независящих от  $\varphi$ .

**Теорема 3.** *Пусть рассматриваются те же условия, что и в теореме 2. Тогда система*

$$\mathbf{E}_{0,x}^{e,h}(M, z_n), \mathbf{E}_{0,y}^{e,h}(M, z_n), \mathbf{H}_{0,x}^{e,h}(M, z_n), \mathbf{H}_{0,y}^{e,h}(M, z_n)$$

полнна в  $L_2^r(\partial D_i)$  – пространстве функций, касательных к образующей поверхности и зависящих от  $\varphi$  как  $\cos \varphi, \sin \varphi$ .

Второе из этих утверждений уже доказано ранее в рамках более общей теоремы о полноте и замкнутости системы электрических и магнитных мультипольных источников на оси частицы при решении одномерных задач отдельно для каждой гармоники Фурье внешнего поля (см. [35], глава 7, теорема 1.15). Выбирая лишь одну гармонику  $m = 1$ , получаем утверждение теоремы 3.

Строгое доказательство теоремы 2 приводится в приложении к настоящей диссертации. В данной главе лишь отметим, что ее справедливость подтверждается с помощью вычислительных экспериментов, проведенных в главе 3

(см. рис. 3.13). Это обстоятельство изначально подтолкнуло автора к идее об использовании дипольных источников на оси частицы в задачах квантовой наноплазмоники. После проведения оценок данная идея легла в основу гибридной схемы метода дискретных источников, в которой для построения решения в рассматриваемом классе полностью трехмерных задач используются электрические и магнитные вертикальные и горизонтальные диполи на оси симметрии частицы.

Таким образом, класс используемых линейно независимых функций является более узким как по сравнению с вариантом размещения дипольных источников на многообразии, так и по сравнению с размещением мультипольных источников на оси. При этом в рамках сформулированных утверждений возможен анализ трехмерных задач со сшивкой полей на всей поверхности рассеивателя, что важно в задачах с несколькими частицами и при наличии подложки в среде. Простая структура носителя ДИ позволяет надеяться на то, что удастся избежать численной линейной зависимости источников в трехмерных задачах дифракции на тонких частицах, а дипольный вид ДИ наряду с другими преимуществами метода дискретных источников позволяет рассчитывать на возможность простой и эффективной численной реализации. Последнее обстоятельство особенно важно в свете рассмотрения задач с учетом ЭНЛ, в которых для моделирования продольных полей требуется большее количество источников, чем для моделирования поперечных волн.

Здесь также важно отметить, что в соответствии с утверждением теоремы 3, для корректного решения задачи недостаточно использования только электрических диполей на оси, и поэтому возникает необходимость в привлечении магнитных диполей для построения вычислительной схемы. Предвосхищая это обстоятельство, система электрических и магнитных источников на оси (2.23) была получена выше на основании теоремы 1.

Также отметим, что проведенная оценка (2.14) является достаточной, но не необходимой. Это значит, что в диапазоне допустимых  $a$  применимость дипольных источников обоснована, однако не исключено, что предложенный метод сможет корректно работать и для частиц с большими характерными размерами. Данное обстоятельство также подтверждается вычислительными экспериментами, см. главу 3, пункт 3.3.3.

## 2.4 Решения для внутренней и внешней задач в случае однородной среды

Для завершения изложения гибридной схемы приведем итоговые выражения для рассеянного поля во внешней области  $D_0$ , а также для полного поля во внутренней области  $D_i$ . Поставив в соответствие каждому источнику некоторую неизвестную комплексную амплитуду  $p$  (для электрических источников) или  $q$  (для магнитных источников), можно записать составную часть решения задачи (2.6)-(2.11) – полное рассеянное поле – в виде суперпозиции полей выбранных источников (2.24), которые представляют собой элементарные функции:

$$\begin{aligned}\mathbf{E}_{0,N}^S(M) &= \sum_{n=1}^N \sum_{\alpha=x,y,z} (p_{\alpha,n}^0 \mathbf{E}_{\alpha,0}^e(M, M_n) + q_{\alpha,n}^0 \mathbf{E}_{\alpha,0}^h(M, M_n)), \\ \mathbf{H}_{0,N}^S(M) &= \sum_{n=1}^N \sum_{\alpha=x,y,z} (p_{\alpha,n}^0 \mathbf{H}_{\alpha,0}^e(M, M_n) + q_{\alpha,n}^0 \mathbf{H}_{\alpha,0}^h(M, M_n)).\end{aligned}\quad (2.26)$$

Отметим, что выбранные таким образом «внешние» источники, помимо уравнений Максвелла, аналитически удовлетворяют условиям изучения на бесконечности.

Для моделирования внутреннего (поперечного) поля мы воспользуемся системой регулярных источников, построенной аналогично системе «внешних» ДИ:

$$\mathbf{A}_{x,n}^i = j_0(k_i R_{MM_n}) \mathbf{e}_x, \quad \mathbf{A}_{y,n}^i = j_0(k_i R_{MM_n}) \mathbf{e}_y, \quad \mathbf{A}_{z,n}^i = j_0(k_i R_{MM_n}) \mathbf{e}_z, \quad (2.27)$$

где введена сферическая функция Бесселя  $j_n(\cdot)$  порядка  $n$ . Отметим, что набор точек  $\{M_n\}_{n=1}^N$ , в которых располагаются внутренние ДИ, может как совпадать с аналогичным набором точек для внешних источников, так и отличаться от него. Без ограничения общности далее будем полагать, что эти наборы совпадают.

Тогда для полей всех «внутренних» источников справедливы следующие выражения:

$$\begin{aligned}\mathbf{E}_{\alpha,T}^e(M, M_n) &= \frac{j}{k\epsilon_i\mu_i} \text{rotrot} \mathbf{A}_{\alpha,n}^i, \\ \mathbf{E}_{\alpha,T}^h(M, M_n) &= \frac{1}{\epsilon_i} \text{rot} \mathbf{A}_{\alpha,n}^i, \\ \mathbf{H}_{\alpha,i}^{e,h}(M, M_n) &= \frac{j}{k\mu_i} \text{rot} \mathbf{E}_{\alpha,T}^{e,h}(M, M_n).\end{aligned}\quad (2.28)$$

Таким образом, полное поле внутри частицы можно записать по аналогии с (2.26):

$$\begin{aligned}\mathbf{E}_T^N(M) &= \sum_{n=1}^N \sum_{\alpha=x,y,z} (p_{\alpha,n}^T \mathbf{E}_{\alpha,T}^e(M, M_n) + q_{\alpha,n}^T \mathbf{E}_{\alpha,T}^h(M, M_n)), \\ \mathbf{H}_i^N(M) &= \sum_{n=1}^N \sum_{\alpha=x,y,z} (p_{\alpha,n}^T \mathbf{H}_{\alpha,i}^{e,h}(M, M_n) + q_{\alpha,n}^T \mathbf{H}_{\alpha,i}^{h,e}(M, M_n)),\end{aligned}\quad (2.29)$$

Здесь обозначения  $\mathbf{E}_{\alpha,T}^{e,h}(M, M_n), \mathbf{E}_T^N(M)$  введены для полей именно поперечных волн внутри частицы  $D_i$ , которые в рассматриваемом случае без пространственной дисперсии среды соответствуют полям введенных источников и полному полулю внутри частицы  $\mathbf{E}_{\alpha,i}^{e,h}(M, M_n), \mathbf{E}_i^N(M)$ , и, следовательно, поля (2.26) и (2.29) аналитически удовлетворяют всем условиям поставленной в начале данного пункта граничной задачи, исключая граничные условия на поверхности  $\partial D_i$ .

Чтобы окончательно построить решение задачи рассеяния (2.6)-(2.11), необходимо обеспечить только выполнение условий сопряжения на поверхности частицы. Соответствующие численные подходы могут выбираться и модифицироваться в зависимости от типа внешнего возбуждения. При анализе вычислительных моделей, предложенных в главе 3, будет подробно рассмотрен метод коллокаций. Кроме того, будут проанализированы особенности процедуры сшивки полей ДИ на границе рассеивающей частицы и вычисления характеристик рассеяния. В данный момент отметим лишь, что аналитическое представление для полей в виде линейной комбинации элементарных функций позволяет обеспечить высокую скорость работы вычислительных алгоритмов, а также их исключительную гибкость при реализации программных пакетов. Таким образом, построено принципиальное решение для (2.6)-(2.11) на основе гибридной системы электрических и магнитных дискретных источников [18; 39].

## 2.5 Учет эффекта нелокальности

Перейдем теперь к учету эффектов пространственной дисперсии металлической среды внутри рассеивателя. В этом случае, как было показано в главе 1, математическая постановка задачи дифракции существенным образом модифицируется с учетом теорий ГДТ и ОНОО, и для ее формулировки необходимо пользоваться уравнениями (1.33), (1.22)–(1.24) и тремя граничными условиями (1.8), (1.10), (1.38):

$$\begin{aligned} \operatorname{rot} \mathbf{H}_i(M) &= jk (\varepsilon_T \mathbf{E}_i(M) + \xi^2 \operatorname{grad} \operatorname{div} \mathbf{E}_L(M)), & \operatorname{rot} \mathbf{H}_0(M) &= jk \varepsilon_0 \mathbf{E}_0(M), \\ \operatorname{rot} \mathbf{E}_i(M) &= -jk \mu_i \mathbf{H}_i(M), & \operatorname{rot} \mathbf{E}_0(M) &= -jk \mu_0 \mathbf{H}_0(M), \\ \mathbf{E}_i(M) &= \mathbf{E}_T(M) + \mathbf{E}_L(M), & \mathbf{E}_0(M) &= \mathbf{E}_0^S(M) + \mathbf{E}_0^0(M), \\ M \in D_i, & & M \in D_0, & \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \mathbf{n}_P \times [\mathbf{E}_i(P) - \mathbf{E}_0^S(P)] &= \mathbf{n}_P \times \mathbf{E}_0^0(P), \\ \mathbf{n}_P \times [\mathbf{H}_i(P) - \mathbf{H}_0^S(P)] &= \mathbf{n}_P \times \mathbf{H}_0^0(P), \\ \mathbf{n}_P \cdot \varepsilon' \mathbf{E}_i(P) &= \mathbf{n}_P \cdot \varepsilon_0 \mathbf{E}_0(P), \quad P \in \partial D_i, \end{aligned}$$

$$\lim_{r \rightarrow \infty} r \left( \sqrt{\varepsilon_0} \mathbf{E}_0^S(M) \times \frac{\mathbf{r}}{r} - \sqrt{\mu_0} \mathbf{H}_0^S(M) \right) = 0, \quad r = |M| \rightarrow \infty. \quad (2.30)$$

При этом условие на бесконечности и уравнения Максвелла во внешней среде остаются без изменений в силу предполагаемого отсутствия продольных волн в диэлектрических средах. Заметим, что параметр  $\xi$  может выбираться как в рамках ГДТ (1.42), так и в рамках ОНОО (1.43). Продольное волновое число  $k_L$  тогда будет вычисляться с помощью величины  $\xi$  по формуле (1.44).

Прежде, чем перейти к построению системы источников, являющихся частными решениями данной задачи, отметим, что электрические поля (2.28) «внутренних» источников – решений уравнения Гельмгольца (2.15) – также являются решениями уравнения Гельмгольца для поперечных волн (1.35) и удовлетворяют условию  $\operatorname{div} \mathbf{E} = 0$  по построению, что естественным образом позволяет сразу использовать полученную в предыдущем параграфе систему “внутренних” дискретных источников для моделирования поперечных полей, причем волновое число поперечных волн  $k_T = k_i$ . Без изменений остается и

система “внешних” источников (2.23), позволяющая аппроксимировать рассеянное поле во внешней области.

Остается построить решение, позволяющее аппроксимировать поле продольной волны во внутренней области на основе уравнения Гельмгольца с продольным волновым числом  $k_L$  (1.34). С учетом фундаментального решения данного уравнения во внутренней области, а так же того факта, что поле продольных волн должно удовлетворять условию  $\text{rot} \mathbf{E} = 0$ , и при условии учета только первых гармоник по  $\varphi$  ( $m < 2$ ) в рамках гибридной схемы, получаем следующую систему решений:

$$\mathbf{E}_{L,j_0}(M, M_n) = \text{grad} (j_0(k_L R_{MM_n})) , \quad (2.31)$$

$$\mathbf{E}_{L, \cos \varphi}(M, M_n) = \text{grad} (j_1(k_L R_{MM_n}) \sin \Theta \cos \varphi) , \quad (2.32)$$

$$\mathbf{E}_{L, \sin \varphi}(M, M_n) = \text{grad} (j_1(k_L R_{MM_n}) \sin \Theta \sin \varphi) , \quad (2.33)$$

где  $\Theta$  и  $\varphi$  — сферические координаты точки наблюдения  $M$  относительно точки с  $n$ -м источником  $M_n$ .

Тогда выражение для продольной компоненты поля внутри плазмонной среды записывается в виде линейной комбинации полей соответствующих ДИ [18]:

$$\mathbf{E}_L^N(M) = \sum_{n=1}^N \sum_{\alpha=j_0, \cos \varphi, \sin \varphi} p_{\alpha,n}^L \mathbf{E}_{L,\alpha}(M, M_n), \quad (2.34)$$

и вместе с выражениями для поперечных волн (2.29) и выражениями для рассеянного поля (2.26) аналитически удовлетворяет всем уравнениям задачи с пространственной дисперсией (2.30), кроме условий сопряжения на поверхности частицы. Как правило, продольные источники размещаются в наборе точек  $\{M_n\}$ , соответствующим набору точек, содержащему внутренние «поперечные» источники. Однако, как и в случае с внутренними и внешними ДИ, данные множества точек в общем случае могут быть различными.

Отметим, что приведенный подход справедлив в достаточно общем виде и применим к любой из существующих вычислительных схем метода дискретных источников, включая модели для осесимметричных частиц. В таком случае для корректного учета эффектов пространственной дисперсии может потребоваться введение “нелокальных” источников для высших гармоник Фурье, или их размещение на других носителях ДИ  $\{M_n\}$ , отличных от введенного в гибридной схеме.

## 2.6 Выводы

Предложена гибридная схема метода дискретных источников, предполагающая использование более узкого класса полных и замкнутых систем линейно независимых функций с простой структурой носителя по сравнению с классическими подходами на основе МДИ. Проведено математическое обоснование развитого подхода и оценены пределы его применимости. На основе решений уравнения Гельмгольца для продольных волн вводятся дискретные источники, позволяющие корректно учитывать ЭНЛ в плазмонной среде. Данный подход может быть использован как при анализе рассеивающих свойств одиночных плазмонных наночастиц несферической формы в однородной среде, так и при анализе свойств плазмонных димеров. Кроме того, гибридная схема МДИ допускает обобщение на случай задач с подложкой, как будет показано в следующей главе.

Материалы настоящей главы опубликованы в работах [18; 39].

## Глава 3. Математические модели плазмонных структур с учетом эффекта нелокальности

Настоящая глава посвящена построению математических моделей дифракции электромагнитных полей на таких наноструктурах, как одиночная плазмонная наночастица несферической формы, и димер (пара близкорасположенных частиц) с учетом ЭНЛ на основе предложенной новой гибридной схемы метода дискретных источников. В первую очередь рассматриваются задачи дифракции в однородных диэлектрических средах и приводятся их соответствующие постановки. В качестве типов внешнего возбуждения рассматриваются как традиционные для МДИ плоские линейно поляризованные волны, так и впервые рассматриваемые в его рамках релятивистские электроны. Подробно обсуждается построение численных алгоритмов для решения указанных задач, вычислительные особенности задач с учетом ЭНЛ, проводится исследование физических свойств данных систем с помощью математического моделирования, осуществляется апостериорный контроль точности расчетов, и сравнение полученных результатов с другими подходами и экспериментальными данными. В завершение главы приведено обобщение рассмотренных моделей дифракции плоских волн на случай расположения указанных плазмонных структур вблизи подложки с плоской границей.

### 3.1 Одиночная частица в однородной среде

#### 3.1.1 Постановка задачи

В первую очередь будем рассматривать задачу дифракции некоторого электромагнитного поля  $\{\mathbf{E}_0^0, \mathbf{H}_0^0\}$  на одиночной осесимметричной плазмонной наночастице  $D_i$  с гладкой границей  $\partial D_i$  в однородной диэлектрической среде  $D_0$ . По аналогии с главой 2, введем декартову систему координат  $\{x,y,z\}$  с началом в центре симметрии частицы, и направим ось  $z$  вдоль ее наибольшей из ее осей вращения. Кроме того, для удобства дальнейшего изложения

введем сферическую систему координат  $\{R, \theta, \varphi\}$ , соответствующую указанной декартовой системе.

Как в случае внешнего возбуждения плоской волной, так и в случае возбуждения электронным пучком граничная задача дифракции падающего поля на наночастице в однородной диэлектрической среде формулируется в виде (2.6)-(2.11) в локальном приближении, или в виде (2.30) в случае учета нелокальных эффектов. Для построения вычислительной модели будем использовать вторую из этих постановок, и для обобщения всего имеющегося материала приведем её ещё раз вместе со всеми ранее введенными обозначениями:

$$\begin{aligned} \text{rot} \mathbf{H}_i(M) &= jk (\varepsilon_T \mathbf{E}_i(M) + \xi^2 \text{graddiv} \mathbf{E}_L(M)), & \text{rot} \mathbf{H}_0(M) &= jk \varepsilon_0 \mathbf{E}_0(M), \\ \text{rot} \mathbf{E}_i(M) &= -jk \mu_i \mathbf{H}_i(M), & \text{rot} \mathbf{E}_0(M) &= -jk \mu_0 \mathbf{H}_0(M), \\ \mathbf{E}_i(M) &= \mathbf{E}_T(M) + \mathbf{E}_L(M), & \mathbf{E}_0(M) &= \mathbf{E}_0^S(M) + \mathbf{E}_0^0(M), \\ M \in D_i, & & M \in D_0, & \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \mathbf{n}_P \times [\mathbf{E}_i(P) - \mathbf{E}_0^S(P)] &= \mathbf{n}_P \times \mathbf{E}_0^0(P), \\ \mathbf{n}_P \times [\mathbf{H}_i(P) - \mathbf{H}_0^S(P)] &= \mathbf{n}_P \times \mathbf{H}_0^0(P), \\ \mathbf{n}_P \cdot \varepsilon' \mathbf{E}_i(P) &= \mathbf{n}_P \cdot \varepsilon_0 \mathbf{E}_0(P), \quad P \in \partial D_i, \end{aligned}$$

$$\lim_{r \rightarrow \infty} r \left( \sqrt{\varepsilon_0} \mathbf{E}_0^S(M) \times \frac{\mathbf{r}}{r} - \sqrt{\mu_0} \mathbf{H}_0^S(M) \right) = 0, \quad r = |M| \rightarrow \infty.$$

Напомним, что величина диэлектрической проницаемости  $\varepsilon_T$  является скалярной комплексной величиной и соответствует экспериментально измеренной диэлектрической проницаемости, или же диэлектрической проницаемости, полученной из теории Друде. Величина  $\varepsilon'$  является её составной частью, определяемой из (1.29) по формуле  $\varepsilon' = \varepsilon_T + j \frac{\omega_p^2}{\omega(\omega - j\gamma)}$ , где  $\gamma$  без индекса соответствует частоте столкновений электронов,  $\omega_p$  – плазменная частота металла.

Кроме того, величина  $\xi$  выбирается в зависимости от используемой теории для описания процессов поведения электронного газа в металле:

$$\xi_{\text{ГДТ}}^2 = \frac{\varepsilon' \beta^2}{\omega(\omega - j\gamma)}, \quad \xi_{\text{ОНОО}}^2 = \frac{\varepsilon' (\beta^2 + D(\gamma - j\omega))}{\omega(\omega - j\gamma)},$$

где скаляр  $D$  – коэффициент диффузии электронов, параметр  $\beta$  в нашем случае связан со скоростью Ферми как  $\beta^2 = 3/5v_F^2$ , причем при  $\beta \rightarrow 0$  и  $D \rightarrow 0$

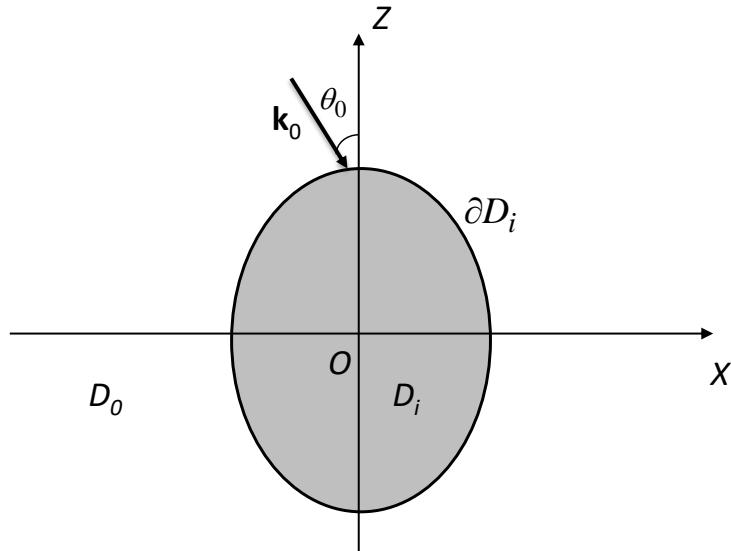


Рисунок 3.1 — Геометрия трехмерной задачи дифракции плоской линейно поляризованной волны на частице в однородной диэлектрической среде.

значение  $\xi \rightarrow 0$ , и поставленная задача (за исключением дополнительного граничного условия) автоматически переходит в задачу для локального приближения без учета эффектов пространственной дисперсии, лишаясь слагаемых, отвечающих за описание продольных волн в плазмонной среде.

Как уже отмечалось ранее (см. пункт 1.4.3), в представленной постановке задачи особенно выделяется дополнительное граничное условие

$$\mathbf{n}_P \cdot \epsilon' \mathbf{E}_i(P) = \mathbf{n}_P \cdot \epsilon_0 \mathbf{E}_0(P), \quad P \in \partial D_i.$$

Дело заключается в корректном выборе  $\epsilon'$ . При учете ЭНЛ его необходимо выбирать как составную часть диэлектрической проницаемости Друде, однако в локальном приближении его необходимо выбирать как полную диэлектрическую проницаемость  $\epsilon_T$ , и тогда третье граничное условие в действительности не является необходимым для решения поставленной задачи.

Простейшим типом внешнего возбуждения является плоская Р- или S-поляризованная волна, которая во введенной декартовой системе определяется формулами (2.12). Геометрия трехмерной граничной задачи дифракции для данного типа внешнего возбуждения представлена на рис. 3.1.

Для дальнейшего изложения также большую роль играет внешнее возбуждениеnanoструктур релятивистскими электронами. Остановимся подробнее на вопросах его актуальности и возможности анализа в рамках поставленной задачи дифракции.

### 3.1.2 Спектроскопия характеристических потерь энергии электронами (EELS)

Для практического использования синтезированных плазмонных частиц требуется тщательное изучение их оптических свойств. Поскольку размер частиц значительно меньше величины дифракционного предела, для этой цели удобным и эффективным инструментом являются методы электронной микроскопии, в частности — спектроскопия характеристических потерь энергии электронами (Electron Energy Loss Spectroscopy, EELS) [110; 111]. В рамках одного из вариантов реализации EELS быстрые электроны (с энергиями более 50кэВ) пролетают мимо исследуемой наночастицы, возбуждая в ней плазмонные моды и теряя при этом некоторую часть своей кинетической энергии. Измеряя спектры потерь энергии прошедших электронов, можно изучать спектральные характеристики плазмонной частицы. К основным преимуществам данного подхода относятся: возможность анализа сразу всего спектра рассеяния с учетом неизлучающих волн, высокое пространственное разрешение, а так же возможность возбуждения и анализа резонансов, невидимых в оптическом диапазоне.

Математическое моделирование EELS играет ключевую роль при интерпретации полученных результатов измерений [38; 111; 112]. В связи с этим в настоящей работе рассматривается математическая модель взаимодействия прямолинейно и равномерно движущегося электрона с плазмонной наночастицей  $D_i$  в однородном пространстве  $D_0$ . Геометрия задачи представлена на рис. 3.2. Отметим, что, вообще говоря, в рамках гибридной схемы частица может быть и несферической формы.

Приведем вид поля соответствующего внешнего возбуждения. Будем предполагать, что электрон представляет из себя точечный единичный заряд  $e$ , движущийся вдоль оси  $z$  с постоянной скоростью  $v$ , который при этом не проходит сквозь наночастицу ( $|\mathbf{b}| > r$ ,  $\mathbf{b}$  — прицельный параметр). Таким образом, можно воспользоваться известными выражениями для электромагнитного поля релятивистского точечного заряда, движущегося со скоростью, сравнимой со скоростью света  $c$  [113].

С помощью преобразования Фурье нетрудно получить данные выражения в спектральном диапазоне, которые приведены в ряде литературных источников [38; 112; 114]:

$$\begin{aligned} \mathbf{E}_{0,x}^0 &= \frac{x - b_x}{\rho} \frac{2e\omega}{v^2\gamma_l} e^{i\omega\frac{z}{v}} K_1\left(\frac{\omega\rho}{v\gamma_l}\right), & \mathbf{H}_{0,x}^0 &= -\frac{y - b_y}{\rho} \frac{2e\omega}{v\gamma_l} e^{i\omega\frac{z}{v}} K_1\left(\frac{\omega\rho}{v\gamma_l}\right), \\ \mathbf{E}_{0,y}^0 &= \frac{y - b_y}{\rho} \frac{2e\omega}{v^2\gamma_l} e^{i\omega\frac{z}{v}} K_1\left(\frac{\omega\rho}{v\gamma_l}\right), & \mathbf{H}_{0,y}^0 &= \frac{x - b_x}{\rho} \frac{2e\omega}{v\gamma_l} e^{i\omega\frac{z}{v}} K_1\left(\frac{\omega\rho}{v\gamma_l}\right), \\ \mathbf{E}_{0,z}^0 &= \frac{i}{\gamma_l^2} \frac{2e\omega}{v^2\gamma_l\varepsilon} e^{i\omega\frac{z}{v}} K_0\left(\frac{\omega\rho}{v\gamma_l}\right), & \mathbf{H}_{0,z}^0 &= 0. \end{aligned} \quad (3.1)$$

Здесь  $\rho^2 = (x - b_x)^2 + (y - b_y)^2$ ,  $K_n(\cdot)$  – цилиндрическая функция Макдональда порядка  $n$ ,  $\gamma_l = \left(\sqrt{1 - v^2/c^2}\right)^{-1}$  – Лоренц-фактор,  $e = -4.8 \cdot 10^{-10}$  – заряд электрона в системе СГС. Видно, что приведенные формулы могут быть аппроксимированы системой источников, предложенной в рамках гибридной схемы. В данном виде указанные формулы необходимо использовать при решении соответствующей граничной задачи дифракции методом дискретных источников.

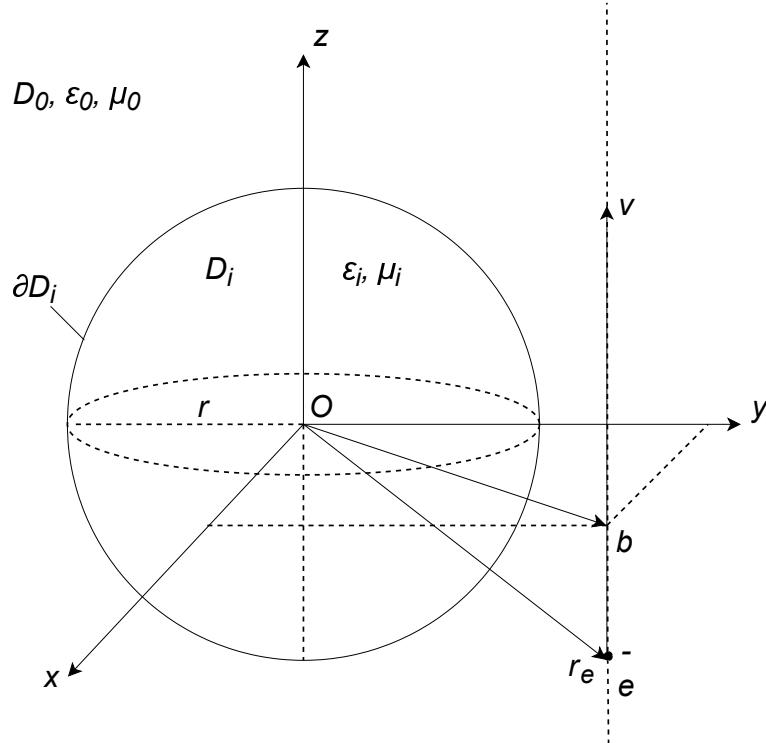


Рисунок 3.2 — Геометрия задачи с внешним возбуждением EELS в однородной диэлектрической среде.

### 3.1.3 Вычислительные особенности задач с учетом ЭНЛ

Прежде, чем перейти к результатам моделирования различных плазмонных частиц, проанализируем поведение величин  $\xi$  и  $k_L$  в частотном диапазоне для таких распространенных плазмонных материалов, как золото и серебро [45; 46]. В целом, ход анализа будет соответствовать подходу, изложенному в работе [21]. В первую очередь убедимся, что абсолютная величина  $\xi$  в оптическом диапазоне действительно составляет порядка ангстрема и соответствует предположению, сделанному в пункте 1.4.5. Так, для серебра соответствующая зависимость  $\xi(\lambda)$  согласно формулам (1.42, 1.43) принимает вид, приведенный на рисунках 3.3 и 3.4, а для золота – вид, приведенный на рисунках 3.5 и 3.6 согласно выбранной временной зависимости  $\exp(j\omega t)$ . Значения параметров плазменной частоты  $\omega_p$ , коэффициента затухания Друде  $\gamma$ , скорости Ферми  $v_F$  и постоянной диффузии  $D$  для серебра составляют  $\hbar\omega_p = 8.99$  эВ,  $\hbar\gamma = 0.025$  эВ,  $v_F = 1.39 \cdot 10^6$  мс<sup>-1</sup>,  $D = 3.61 \cdot 10^{-4}$  м<sup>2</sup>с<sup>-1</sup>, а для золота, соответственно,  $\hbar\omega_p = 9.02$  эВ,  $\hbar\gamma = 0.071$  эВ,  $v_F = 1.39 \cdot 10^6$  мс<sup>-1</sup>,  $D = 1.90 \cdot 10^{-4}$  м<sup>2</sup>с<sup>-1</sup>.

Видно, что учет диффузии электронов в рамках модели ОНОО приводит к такому росту мнимой части пространственного масштаба нелокальности  $\xi$ , что она становится сопоставимой по величине с вещественной частью. Данные

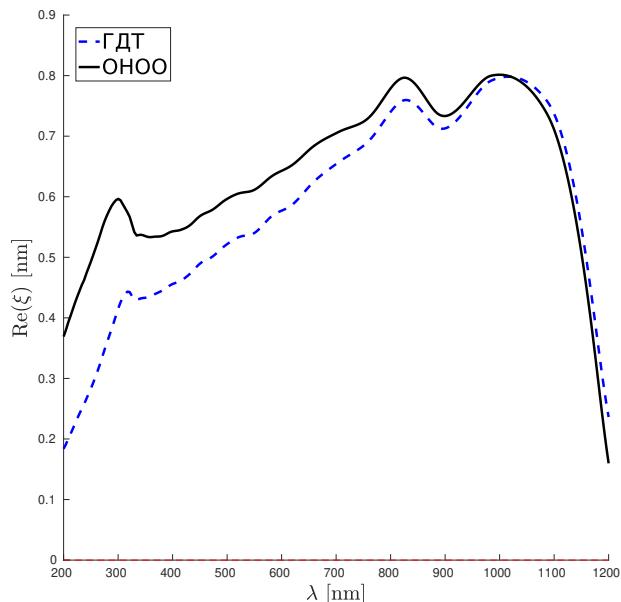


Рисунок 3.3 — Вещественная часть  $\xi$  в приближениях ГДТ и ОНОО для серебра ( $Ag$ ).

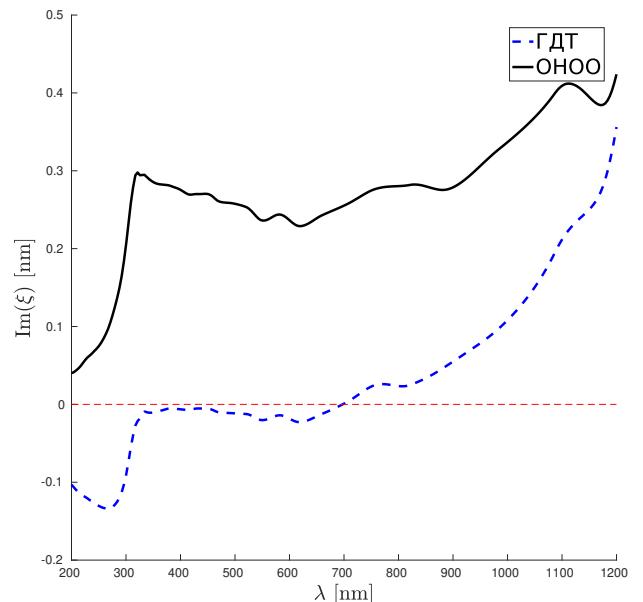


Рисунок 3.4 — Мнимая часть  $\xi$  в приближениях ГДТ и ОНОО для серебра ( $Ag$ ).

результаты полностью согласуются с уже существующим анализом масштаба эффектов пространственной дисперсии [21].

В дополнение к проведенной оценке  $\xi$  для указанных материалов также нетрудно построить графики зависимости абсолютной величины продольного волнового числа  $k_L$  от длины волны внешнего возбуждения в соответствии с дисперсионными соотношениями (1.44). Их вид приведен на рисунках 3.7 и 3.8. Особенno важным для численного моделирования здесь является тот факт, что, как и ожидалось, волновое число продольных волн в плазмонной среде по абсолютной величине существенно (на несколько порядков) превышает волновое число поперечных волн, тем самым значительно повышая значение величины  $k \cdot d$ , где  $d$  – характерный размер рассеивателя, которая напрямую связана с пределами применимости многих вычислительных методов. В рамках МДИ продольное волновое число  $k_L$  входит в сферические функции Бесселя в системе «нелокальных» внутренних источников (2.31), что делает их быстро осциллирующими. Однако в отсутствие процедур интегрирования полей таких источников МДИ очень хорошо приспособлен к решению задач, требующих учета пространственной дисперсии в среде.

Также особо отметим тот факт, что при вычислении  $\xi$  и  $k_L$  как в ГДТ, так и в ОНОО приближениях используется величина  $\varepsilon' = \varepsilon_T + j \frac{\omega_p^2}{\omega(\omega - j\gamma)}$ , определяемая из соотношения (1.29). В соответствии с физическим смыслом, если бы

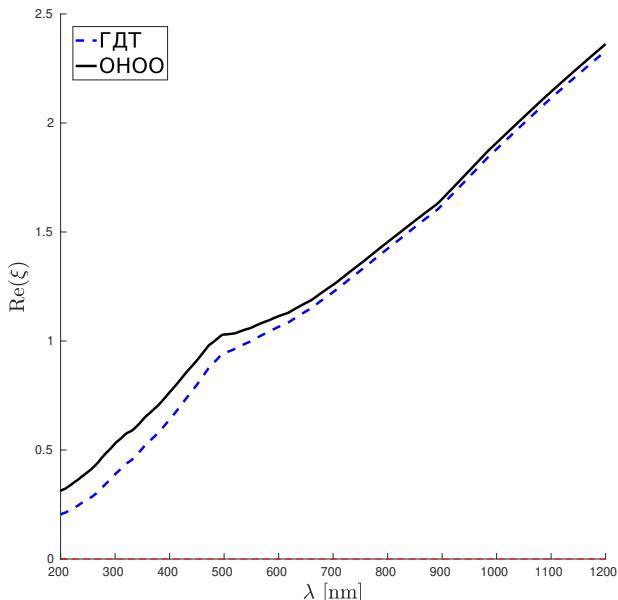


Рисунок 3.5 — Вещественная часть  $\xi$  в приближениях ГДТ и ОНОО для золота ( $Au$ ).

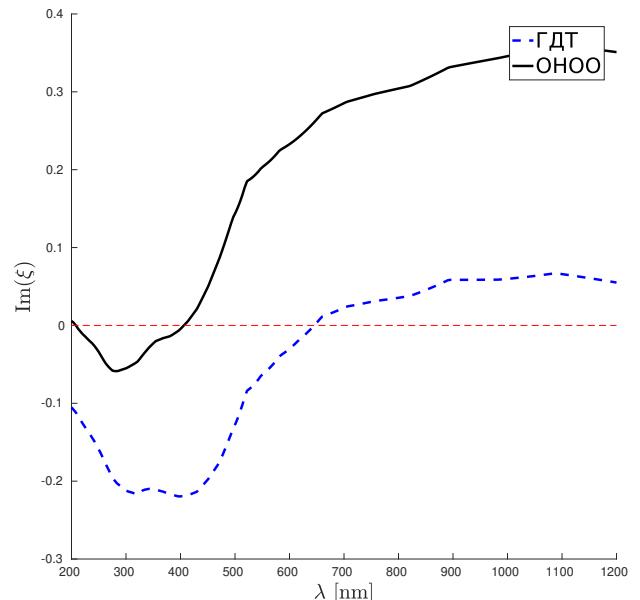


Рисунок 3.6 — Мнимая часть  $\xi$  в приближениях ГДТ и ОНОО для золота ( $Au$ ).

теория Друде (1.27) полностью описывала поведение диэлектрической проницаемости в металлах, данная величина должна была бы быть чисто вещественной и отвечать за вклад ионного остова кристаллической решетки  $\epsilon_{core}$  в диэлектрическую проницаемость. Однако в реальных условиях данная величина обладает мнимой составляющей, которую, вообще говоря, не следует отбрасывать. Тем не менее, в достаточно широком диапазоне исследуемых в настоящей работе длин волн, как правило, имеет место соотношение  $\text{Im}(\epsilon') \ll \text{Re}(\epsilon')$  в силу достаточно высокой точности подхода Друде.

Проведенная оценка величины  $\xi$  дает основания полагать, что нелокальные эффекты более всего проявляются в частицах и тонких пленках нанометровых масштабов. Данное обстоятельство будет подтверждено ниже в ходе численных экспериментов. Перейдем теперь к непосредственному построению и анализу вычислительных схем на основе МДИ, в том числе с учетом эффектов пространственной дисперсии плазмонной среды.

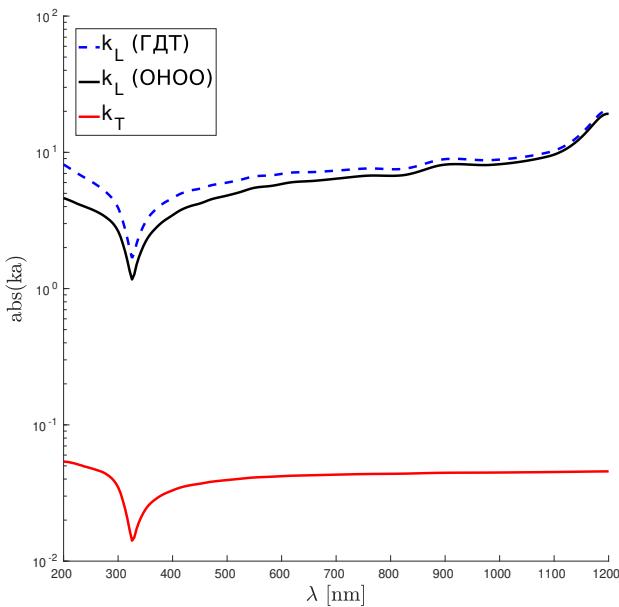


Рисунок 3.7 — Абсолютная величина волнового числа  $k_L$  в приближениях ГДТ и ОНОО и волнового числа  $k_T$  для серебра ( $Ag$ ) в зависимости от длины волны внешнего поля.

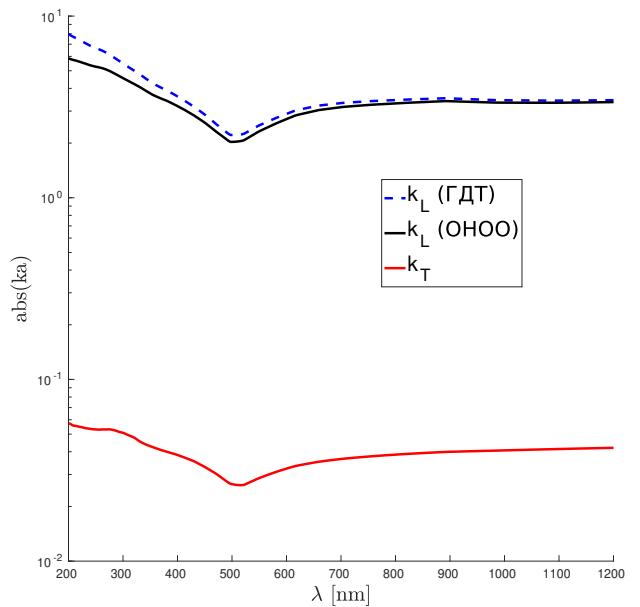


Рисунок 3.8 — Абсолютная величина волнового числа  $k_L$  в приближениях ГДТ и ОНОО и волнового числа  $k_T$  для золота ( $Au$ ) в зависимости от длины волны внешнего поля.

### 3.1.4 Численный алгоритм на основе гибридной схемы МДИ

Аналитическое решение уравнений Максвелла во всех областях, удовлетворяющее условиям на бесконечности, строится с помощью линейных комбинаций полей «внутренних» (2.29), (2.34) и «внешних» (2.26) дипольных источников электрического и магнитного типа с неизвестными комплексными амплитудами  $p$  и  $q$ , расположенных согласно гибридной схеме МДИ внутри частицы в некотором наборе точек  $\{M_n\}_{n=1}^N$  на оси симметрии частицы. Таким образом, для решения исходной задачи необходимо обеспечить выполнение граничных условий сопряжения полей на поверхности частицы. Для этого необходимо определить неизвестные амплитуды дискретных источников.

В дальнейшем будем рассматривать рассеиватели в форме вытянутых и сплюснутых сфEROидов. Тогда набор точек  $\{M_n\}_{n=1}^N$  с пятнадцатью линейно независимыми «внешними» и «внутренними» дискретными источниками в каждой из точек можно равномерно разместить на большей оси симметрии внутри сфEROида, сонаправленной с осью  $z$  декартовой системы координат.

Для вычисления неизвестных амплитуд ДИ  $\{p_{\alpha,n}^T, p_{\alpha,n}^L, p_{\alpha,n}^0, q_{\alpha,n}^T, q_{\alpha,n}^0\}_{n=1}^N$  могут применяться различные подходы. Установлено, что наиболее стабильные результаты в большинстве случаев могут быть получены при псевдообращении переопределенной системы линейных уравнений, которая получается из поточечного удовлетворения граничным условиям сшивки полей на поверхности частицы [17; 33]. Для этого на поверхности частицы  $\partial D_i$  выбирается некоторый набор точек сшивки полей  $\{P_l\}_{l=1}^K$ , также называемых точками коллокаций, равномерно охватывающих эту поверхность [103], и в каждой точке записываются граничные условия в следующем виде:

$$\begin{aligned} \varepsilon' (\mathbf{E}_T^N(P_l) + \mathbf{E}_L^N(P_l)) \cdot \hat{\mathbf{n}}_{P_l} &= \varepsilon_0 (\mathbf{E}_{0,N}^S(P_l) + \mathbf{E}_0^0(P_l)) \cdot \hat{\mathbf{n}}_{P_l}, \\ (\mathbf{E}_T^N(P_l) + \mathbf{E}_L^N(P_l)) \cdot \hat{\boldsymbol{\tau}}_{P_l} &= (\mathbf{E}_{0,N}^S(P_l) + \mathbf{E}_0^0(P_l)) \cdot \hat{\boldsymbol{\tau}}_{P_l}, \\ (\mathbf{E}_T^N(P_l) + \mathbf{E}_L^N(P_l)) \cdot \hat{\mathbf{t}}_{P_l} &= (\mathbf{E}_{0,N}^S(P_l) + \mathbf{E}_0^0(P_l)) \cdot \hat{\mathbf{t}}_{P_l}, \\ \mathbf{H}_i^N(P_l) \cdot \hat{\boldsymbol{\tau}}_{P_l} &= (\mathbf{H}_{0,N}^S(P_l) + \mathbf{H}_0^0(P_l)) \cdot \hat{\boldsymbol{\tau}}_{P_l}, \\ \mathbf{H}_i^N(P_l) \cdot \hat{\mathbf{t}}_{P_l} &= (\mathbf{H}_{0,N}^S(P_l) + \hat{\mathbf{H}}_0^0(P_l)) \cdot \hat{\mathbf{t}}_{P_l}, \end{aligned} \quad \{P_l\}_{l=1}^K \in \partial D_i, \quad (3.2)$$

где  $\hat{\mathbf{t}}, \hat{\mathbf{t}}, \hat{\mathbf{n}}$  — касательные и нормальный вектора к поверхности рассеивателя  $\partial D_i$  в точке  $P$  из набора  $\{P_l\}$ , образующие правую тройку. Система (3.2) выбирается переопределенной: число точек коллокаций  $K$  превышает число неизвестных амплитуд  $15N$  [18; 115]. Амплитуды ДИ определяются как нормальное псевдорешение данной системы с использованием регуляризации А.Н. Тихонова в норме  $l_2$  [116]. Данный подход известен как обобщенный метод коллокаций [103]. В данной работе для вычисления координат точек коллокаций поверхность сфероида разбивается на участки равной площади, в центре каждого из которых и располагается точка  $P_l$ .

Одним из преимуществ МДИ при применении метода коллокаций является возможность апостериорной оценки погрешности расчетов. В предложенной схеме она осуществляется с помощью ввода другого набора точек  $\{B_l\}_{l=1}^Q \in \partial D_i$ , координаты которых соответствуют вершинам введенных выше участков равной площади. Тогда погрешность вычислений определяется как невязка системы граничных условий на  $\partial D_i$  в норме  $l_2$  для набора точек  $\{B_l\}_{l=1}^Q$  относительно решения, полученного с помощью системы (3.2) [18].

Получив амплитуды ДИ, легко вычислить диаграмму направленности рассеянного поля  $\mathbf{F}$ , которая определяется как

$$\mathbf{E}_0^S(M)/|\mathbf{E}_0^0(M)| = \frac{\exp\{-jk_0R\}}{R} \mathbf{F}(\theta_0, \theta, \varphi) + O(1/R^2), \quad R \rightarrow \infty.$$

Еще одним преимуществом МДИ является то обстоятельство, что в его рамках компоненты диаграммы направленности могут быть записаны в виде линейной комбинации элементарных функций с весовыми множителями, роль которых играют найденные амплитуды ДИ:

$$\begin{aligned} F_\theta(\theta, \theta_0, \varphi) &= -jk \sum_{n=1}^N \left\{ -p_{x,n}^0 \cos \theta \cos \varphi - p_{y,n}^0 \cos \theta \sin \varphi + p_{z,n}^0 \sin \theta + \right. \\ &\quad \left. + q_{x,n}^0 \sin \varphi - q_{y,n}^0 \cos \varphi \right\} \exp \left( jk_0 \sin \theta (x_n \cos \varphi + y_n \sin \varphi) - jk_0 z_n \cos \theta \right) \\ F_\varphi(\theta, \theta_0, \varphi) &= -jk \sum_{n=1}^N \left\{ p_{x,n}^0 \sin \varphi - p_{y,n}^0 \cos \varphi + q_{x,n}^0 \cos \theta \cos \varphi + \right. \\ &\quad \left. + q_{y,n}^0 \cos \theta \sin \varphi - q_{z,n}^0 \sin \theta \right\} \exp \left( jk_0 \sin \theta (x_n \cos \varphi + y_n \sin \varphi) - jk_0 z_n \cos \theta \right) \end{aligned} \quad (3.3)$$

Данные выражения непосредственно получаются при рассмотрении поведения полей каждого из «внешних» дискретных источников (2.24) на бесконечности

в сферической системе координат, и записи соответствующей линейной комбинации (2.26) в явном виде. Компонента  $F_R$  диаграммы при этом аналитически обращается в ноль.

На основе диаграммы рассеяния вычисляются такие характеристики рассеяния, как дифференциальное сечение рассеяния (DSC) и полное сечение рассеяния  $\sigma$ , также обозначаемое, как SCS [18]:

$$\begin{aligned} \text{DSC}(\theta_0, \theta, \varphi) &= |F_\theta(\theta_0, \theta, \varphi)|^2 + |F_\varphi(\theta_0, \theta, \varphi)|^2, \\ \sigma(\theta_0) &= \int_{\Omega} \text{DSC}(\theta_0, \theta, \varphi) d\Omega. \end{aligned} \quad (3.4)$$

Здесь  $\Omega$  — единичная сфера,  $\{R, \theta, \varphi\}$  — сферические координаты точки  $M$ , соответствующие выбранным ранее декартовым координатам.

Кроме того, для решения задач EELS нам также потребуется возможность вычисления спектра вероятности потерь энергии электронами в рамках предложенного алгоритма МДИ с помощью найденных амплитуд дискретных источников. Чтобы построить спектр EELS на основе решения граничной задачи (2.30) с внешним возбуждением (3.1), будем считать, что потери энергии электрона при взаимодействии с наночастицей много меньше, чем его исходная кинетическая энергия ( $\sim 0.5 - 50\text{эВ}$  против  $\sim 50 - 300\text{кэВ}$ ). В таком случае исходная величина — вероятность потери энергии электроном  $P(\omega)$  — может быть выражена через рассеянное поле  $\mathbf{E}_0^S$  через интеграл следующего вида вдоль траектории электрона [38; 111; 112] :

$$P(\omega) = \frac{e}{\pi\hbar\omega} \int_{-\infty}^{+\infty} \text{Re} \left\{ \mathbf{E}_0^S(\mathbf{r}_e, \omega) e^{-i\omega z/v} \right\} d\mathbf{r}_e. \quad (3.5)$$

Здесь  $\hbar$  — приведенная постоянная Планка,  $e$  — заряд электрона,  $\mathbf{r}_e$  — радиус-вектор электрона, см. рис. 3.2. Аналитическое выражение для рассеянного поля, построенное в рамках МДИ, также упрощает интегрирование в данном соотношении. Корректные значения интеграла могут быть получены с помощью квадратурных формул [117].

### 3.1.5 Результаты моделирования дифракции плоских волн

Для аprobации развитого подхода будем рассматривать плазмонные частицы сферической формы диаметра  $d$  в однородном пространстве с материальными характеристиками  $\epsilon_0 = \mu_0 = 1$ . Границная задача дифракции плоской волны на подобной частице допускает аналитическое решение как в локальном приближении, так и с учетом эффектов пространственной дисперсии плазмонной среды (см. раздел 1.5.1), что позволяет провести полноценное тестирование вычислительного алгоритма. В ходе настоящей работы в дальнейшем будут использоваться наночастицы из серебра и золота. Соответствующие показатели преломления в рассматриваемых спектральных областях определим с помощью работы [45].

Пусть диаметр серебряной сферической наночастицы равен 6 nm. На рис. 3.9 приведено сравнение соответствующего полного сечения рассеяния (3.4) в локальном приближении, а также в приближениях ГДТ и ОНОО. Дополнительное граничное условие использовалось только в рамках нелокальных теорий, причем  $\epsilon'$  выбиралось комплексным. Графики, представленные сплошными линиями, получены с помощью аналитического решения, выписанного для сферических наночастиц [21]. На данных графиках нанесены точки, соответствующие результатам, полученным по вычислительной схеме МДИ и демонстрирующим хорошую степень точности предложенной модели [18]. Поскольку случай сферы представляется довольно простым для решения, в программном комплексе число точек коллокаций выбиралось как  $K \leq 100$ , а число точек с источниками как  $N \leq 5$ , что приводит к системе уравнений размерности порядка 500x75 для одной длины волны за счет использования пяти граничных условий в каждой точке сшивки  $P_l$  (3.2), и 15 источников в одной точке  $M_n$  в соответствии с (3.2). В вычислительном эксперименте было установлено, что такое количество источников и точек коллокаций для задачи дифракции плоской волны на сфере является избыточным, и можно воспользоваться меньшим количеством ДИ ( $N \geq 3$ ) и меньшими значениями  $K$  при незначительно возрастающих значениях невязки решения. Такой результат наглядно демонстрирует вычислительную сходимость развитого подхода, важную при анализе задач с учетом новизны ЭНЛ.

В дополнение к полученному результату на рис. 3.10 приведено дифференциальное сечение рассеяния данной сферы для длины волны 357.9нм. Для строгости отметим, что представленные графики были получены при падении плоской Р-поляризованной волны под углом  $\theta_0 = 0$  на частицу. Симметрия трехмерной задачи в данном случае позволяет построить совершенно аналогичные графики при распространении плоской Р,S-поляризованной волны под любыми углами  $\theta_0, \varphi_t$  и таким образом провести дополнительную верификацию гибридной схемы, что и было успешно осуществлено. Апостериорная оценка погрешности гибридной схемы МДИ во всех рассмотренных случаях не превысила 1% и колебалась от  $10^{-2}\%$  при падении Р-поляризованной волны вдоль оси  $z$  до 0.5% при падении Р-поляризованной волны под углом  $\theta_0 = \pi/2$ . Это обстоятельство связано с тем, что в последнем случае возрастает ошибка аппроксимации поля внешнего возбуждения (2.14) в связи с используемой системой ДИ (2.23). Видно, что учет ЭНЛ с помощью ГДТ и ОНОО оказывает значительное влияние на положение максимума плазмонного резонанса и интенсивность рассеяния. Аналогичные результаты были получены и для золотых наночастиц. В данном разделе они будут опущены для компактности изложения.

На рис. 3.11 приведены очень важные результаты, демонстрирующие изменение полного сечения рассеяния в зависимости от размеров серебряной

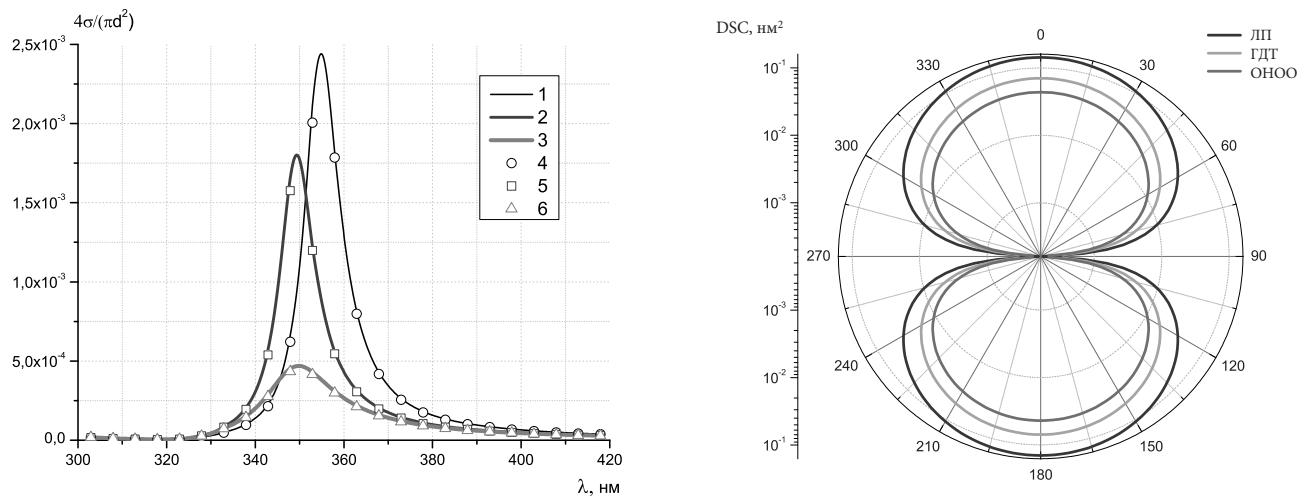


Рисунок 3.9 — Полное сечение рассеяния для сферы  $d = 6\text{нм}$ . Сплошные линии — аналитическое решение, символные — решение МДИ. 1,4 — локальное приближение (ЛП); 2,5 — ГДТ; 3,6 — ОНОО.

Рисунок 3.10 — DSC, полученное по гибридной схеме МДИ для Ag  $R = 5\text{нм}$  сферы в вакууме. Внешнее возбуждение: Р-поляризованная волна,  $\lambda = 357.9\text{nm}$ ,  $\theta_0 = 0$ , апостериорная оценка погрешности МДИ: менее 1%.

наносферы в локальном и ОНОО приближениях. Данные результаты получены с помощью гибридной схемы МДИ, апостериорная оценка погрешности составляет менее 1%. Уменьшение размера частицы ожидаемо приводило к уменьшению величины невязки. Видно, что у нелокальных частотных характеристик меняется не только интенсивность рассеяния, но и происходит сдвиг ее максимума в коротковолновую область с уменьшением размера частицы: для сфер диаметром 4нм и 10нм разница между положениями пика плазмонного резонанса составляет  $\Delta = 5\text{нм}$  [18]. Локальные расчеты при этом отражают лишь изменение интенсивности рассеяния, и совершенно не предсказывают сдвиг резонансной частоты, что весьма наглядно иллюстрирует влияние ЭНЛ на оптические свойства наноструктур. Если рассматривать только частицу диаметром 4нм, то разница в положении пика между локальным и ОНОО приближениями составляет порядка 10нм, а амплитуда падает на порядок величины. Различия между предсказаниями ЛП и ОНОО постепенно уменьшаются при увеличении диаметра частицы. Таким образом, изображение на рис. 3.11 подтверждает, что учет ЭНЛ важен именно для небольших частиц, что согласуется с теоретической оценкой  $\xi$ .

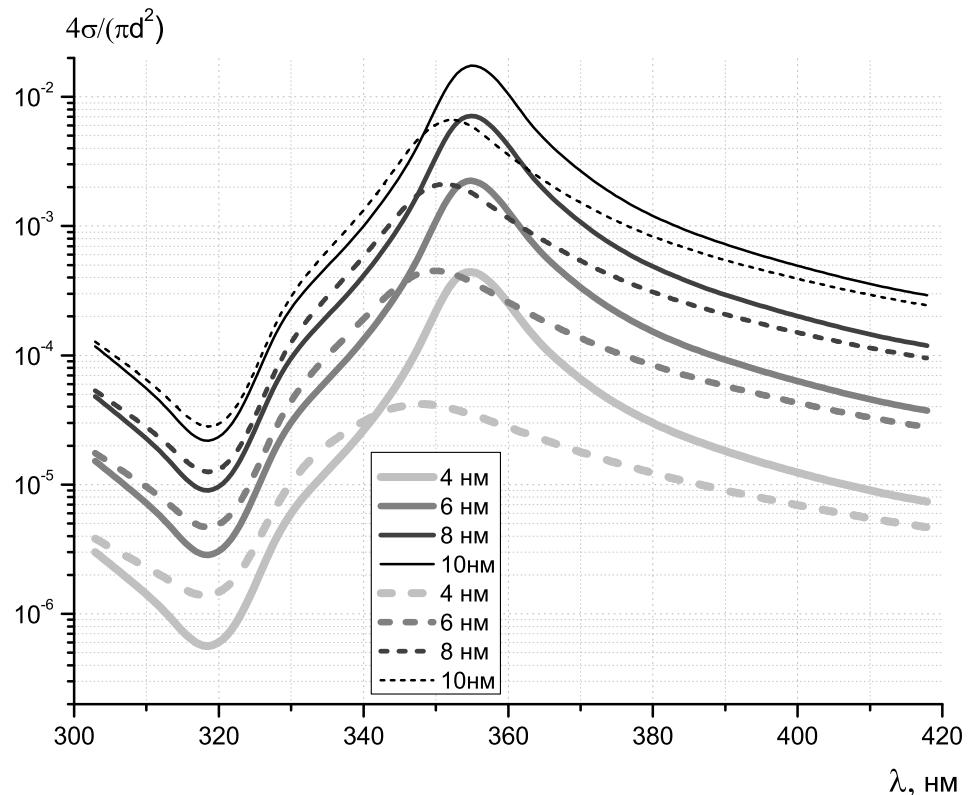


Рисунок 3.11 — Полные сечения рассеяния для сфер диаметром от 4нм до 10нм. Локальное приближение — сплошные линии; ОНОО-приближение — пунктирные линии.

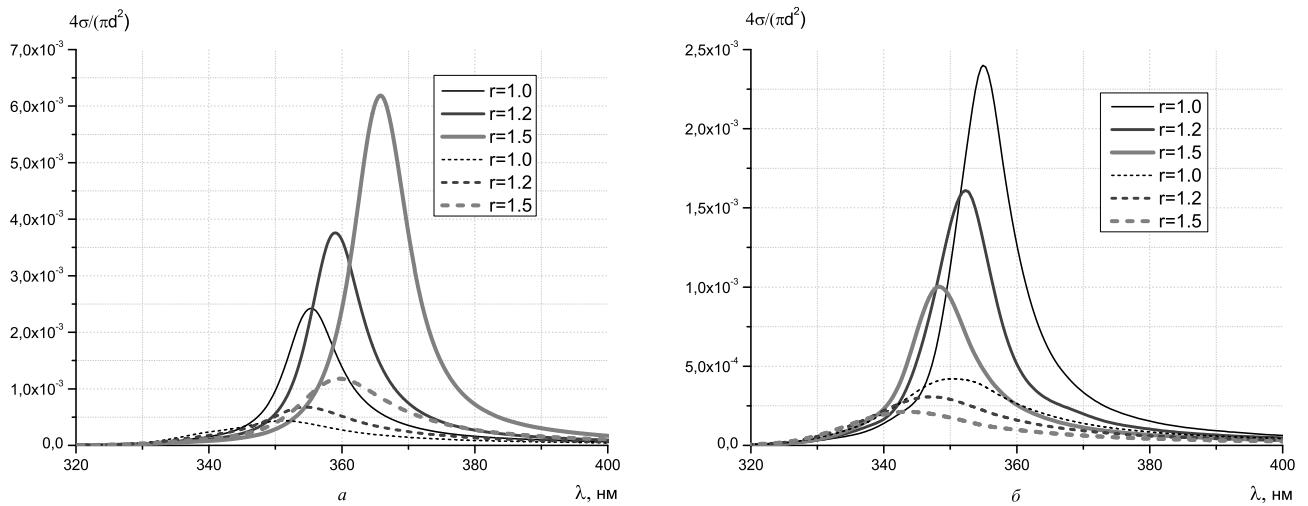


Рисунок 3.12 — Полные сечения рассеяния: *а* — для сплюснутых сфероидов; *б* — для вытянутых сфероидов. Локальное приближение — сплошные линии; ОНОО-приближение — пунктирные линии. Эквиобъемный диаметр  $d = 6$  нм

Перейдем к анализу рассеивающих свойств деформированных сферических частиц методом дискретных источников. В качестве данных рассеивателей будем поочередно рассматривать серебряные наносфериоиды с различными соотношениями сторон  $r$  и варьируемым эквиобъемным диаметром  $d$ , которые в случае  $r = 1$  переходят в сферу. Для примера рассмотрим сплюснутые (рис. 3.12,*а*) и вытянутые (рис. 3.12,*б*) наносфериоиды с фиксированным эквиобъемным диаметром  $d = 6$  нм и будем варьировать  $r$ . Отметим, что в силу особенностей аналитического продолжения полей внутри сплюснутых сфероидов координаты ДИ необходимо выбирать в комплексной плоскости, отступая от оси симметрии частицы в мнимой части координат источников [33; 35].

Вычислительный эксперимент с оценкой погрешности менее 2% показывает, что при увеличении  $r$  для сплюснутого сфероида происходит смещение пика плазмонного резонанса в длинноволновую область, что согласуется с существующими экспериментальными данными [118]. В случае вытянутого сфероида при его деформации вплоть до  $r = 1.5$  происходит спад интенсивности резонансного пика одновременно с его сдвигом в коротковолновую часть спектра [18]. Данные результаты воспроизводятся в рамках общей схемы МДИ, поэтому на данном примере можно судить о корректности расчетов для несферических частиц в рамках гибридной схемы. В целом, полученные с помощью расчетов зависимости поведения спектров от степени деформации частиц справедливы как в локальном, так и нелокальном ОНОО-приближении, при этом нелокальные

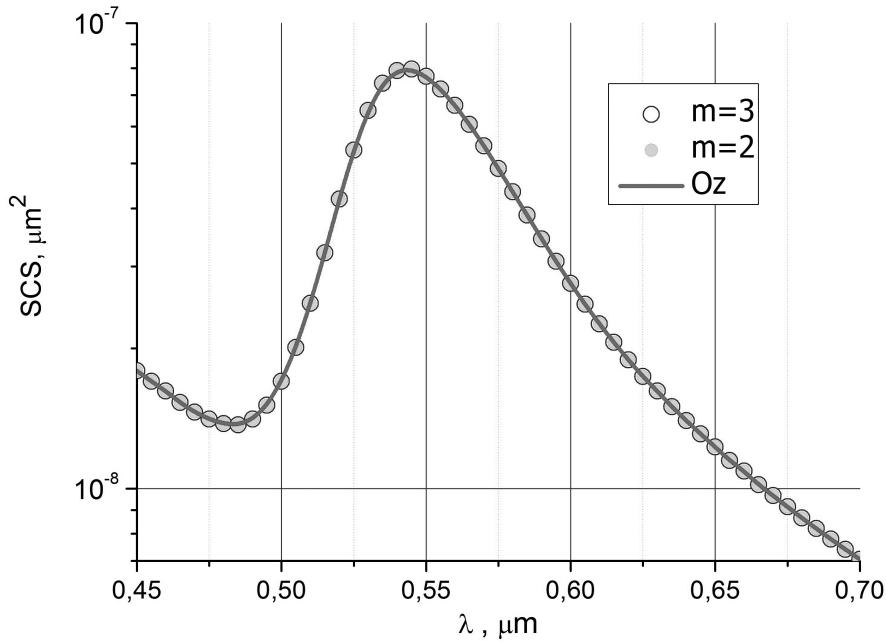


Рисунок 3.13 — Сечение рассеяния для одиночного вытянутого Au сфероида с эквиобъемным диаметром 10нм и соотношением осей 2 при падении плоской Р-поляризованной волны под углом  $\pi/2$ .  $m=3$  – общее число гармоник 3;  $m=2$  – общее число гармоник 2; Oz – только вертикальные электрические диполи.

спектральные характеристики наноразмерных рассеивателей существенно отличаются от классических. Однако в данном случае пока нельзя точно говорить об экспериментально подтвержденной роли ЭНЛ. Для сфероидов с выбранным соотношением сторон число точек с источниками выбиралось как  $N \leq 15$ , число точек коллокаций  $K \leq 300$ .

Отметим, что сплюснутые сфероиды являются одним из возможных способов описания нанодисков, широко распространенных в современных приложениях наноплазмоники. Поэтому особый интерес представляет корректное моделирование соответствующих дифференциальных и интегральных характеристик рассеяния, требующее строгого учета ЭНЛ и осуществимое в рамках предложенного подхода. Кроме того, ЭНЛ необходимо учитывать при анализе рассеивателей из других материалов, таких, как золото или полупроводниковые материалы [18]. Для сфероидов сравнение результатов как в локальном, так и в ОНОО-приближениях проводилось с общей схемой МДИ. Таким образом, показано, что гибридная схема МДИ применима для анализа свойств несферических рассеивателей данных форм.

В свете сравнения с общей схемой МДИ (в данном случае с ее реализацией для осесимметричной задачи с мультипольными источниками на оси и сшивке полей на образующей линии частицы по отдельности для каждой гармоники Фурье [100]) следует дополнительно привести численное подтверждение теоремы 2 из пункта 2.3. А именно, покажем, что для моделирования плоской волны, падающей на сфериод под углом  $\theta_0 = \pi/2$ , достаточно привлечения лишь вертикальных диполей. Для этого построим SCS на золотом сфероиде с эквиобъемным диаметром  $d = 10\text{нм}$  и соотношением сторон  $r = 2$  в вакууме как с помощью мультипольных источников, так и с помощью дипольных ДИ. Результаты сравнения, свидетельствующие о корректности сделанных предложений, приведены на рис. 3.13.

### 3.1.6 Моделирование EELS

Проведем теперь анализ применимости предложенного вычислительного подхода к решению задач EELS. В данном случае, следуя устоявшимся в электронной микроскопии обозначениям, будем строить спектры EELS не в зависимости от длины волны внешнего возбуждения, а в зависимости от энергии  $\hbar\omega$  в электронвольтах. Поскольку данная модель является принципиально новой не только в силу использования гибридной схемы, но и в целом для метода дискретных источников, проведем апробацию предложенной модели на примере наносферы диаметром  $d = 4\text{нм}$  в вакууме с  $\epsilon_0 = \mu_0 = \mu_i = 1$ . Положим прицельный параметр равным  $\mathbf{b} = (b_x, b_y)$ , где  $b_x = 2.3\text{нм}$ ,  $b_y = 0$ , а скорость внешнего электрона  $v = 50\text{кэВ}$ .

По уже указанной выше причине новизны модели EELS, для верификации предложенного подхода построим спектр вероятности потерь энергии электронами при облучении ими указанной наносферы в локальном приближении, и сравним его с аналитическим решением [90; 91]. Результат сравнения представлен на рис. 3.14, из которого следует, что численный и аналитический спектры совпадают с достаточной степенью точности. Однако следует отметить, что даже при использовании достаточно большого количества точек коллокаций и источников (сравнимых по значениям с аналогичными величинами, которые

использовались для моделирования сфериоидов) в данном случае невязка решения МДИ составляет порядка 15%. Это связано с тем, что мы работаем с источником поля в ближней зоне, и, соответственно, требуется как можно более точное выполнение граничных условий в концепции квазирешения, как отмечено в пункте 2.1. Метод коллокаций способен обеспечить требуемую точность вычислений при достаточно большом количестве точек коллокаций и соответствующем числе источников, что существенно влияет на производительность численного алгоритма.

Вычислительный эксперимент показал, что невязка решения экспоненциально убывает при увеличении абсолютной величины прицельного параметра  $\mathbf{b}$ , и возрастает по мере приближения траектории электрона к поверхности частицы, соответственно. Так, для значений модуля прицельного параметра  $|\mathbf{b}| \geq 3\text{ нм}$  при указанных размерах частицы невязка решения составляет менее 5%. Зачастую в эксперименте для обеспечения наилучших результатов траектория электрона выбирается таким образом, чтобы быть как можно ближе к поверхности частицы, или же чтобы она вовсе проходила сквозь частицу. В связи с этим, с одной стороны, интерес представляет дальнейшее улучшение предложенного подхода и его оптимизация для эффективного анализа случаев с траекторией электрона, проходящей вблизи частицы. С другой стороны, развитие современных экспериментальных подходов уже сейчас позволяет проводить

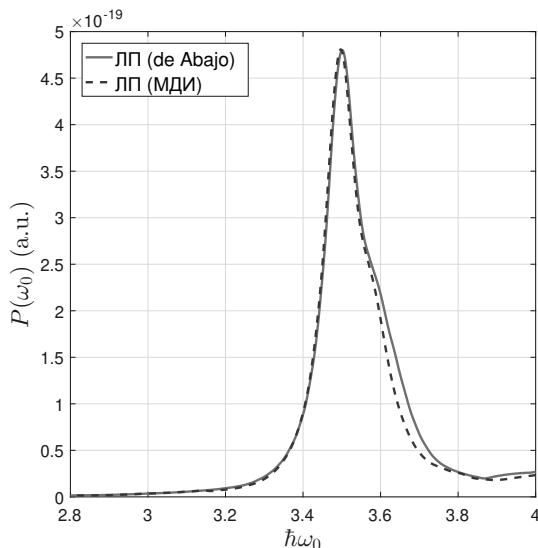


Рисунок 3.14 — Спектр EELS для  $Ag$  наносферы диаметром  $d = 4\text{ нм}$  в локальном приближении (LRA). Сплошная линия — аналитическое решение. Пунктир — численное решение по схеме МДИ (DSM).

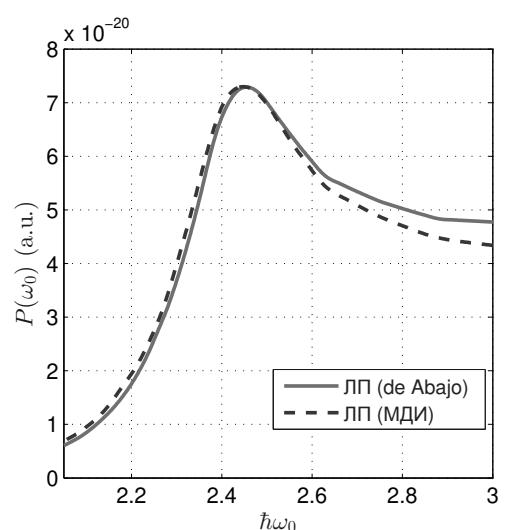


Рисунок 3.15 — Спектр EELS для  $Au$  наносферы диаметром  $d = 4\text{ нм}$  в локальном приближении (LRA). Сплошная линия — аналитическое решение. Пунктир — численное решение по схеме МДИ (DSM).

измерения характеристических потерь энергии электронами при их достаточном удалении от поверхности частицы с приемлемой степенью точности. Далее будет приведен соответствующий пример. Для завершения апробации модели EELS на основе МДИ в локальном приближении на рисунке 3.15 также приведено сравнение спектра EELS золотой наночастицы того же диаметра с аналитическим решением.

В рамках гибридной схемы МДИ при решении задач EELS также возможен учет эффекта нелокальности. Для максимально корректной апробации результатов моделирования, а также для наглядной демонстрации влияния ЭНЛ в качестве ориентировочных результатов будем использовать экспериментальные спектры и резонансные частоты, недавно полученные для серебряных частиц, внедренных в кварцевую структуру (silica) [8]. Плазменные параметры серебра остаются неизменными, а показатель преломления окружающей диэлектрической среды учитывается в полях внешних ДИ и в дополнительном граничном условии по построению. Поле релятивистского электрона (3.1), по аналогии с задачами электростатики, приобретает множитель  $1/\epsilon_0$ , зависящий от показателя преломления кварца  $n_0$ . Используя указанные в экспериментальной статье параметры, одним из важнейших среди которых является степень удаленности электрона от поверхности рассеивателя, достигающую четверти диаметра частицы, в ОНОО-приближении мы получили результаты, представленные на рисунках 3.16 и 3.17. Сравнение с результатами, полученными в локальном приближении, приведено на рисунке 3.18. Следует особо отметить, что при рассмотрении частицы в диэлектрической среде при указанных прицельных параметрах удалось добиться понижения невязки решения до приемлемого 1%.

Сравнение рисунков 3.16 и 3.17 с аналогичными результатами в цитируемой публикации (см. [8], fig. 2 и 4) экспериментально подтверждает решающее влияние ЭНЛ на свойства наночастиц рассматриваемых размеров, а также однозначно подтверждает корректность гибридной схемы МДИ и учета в ее рамках квантового эффекта нелокального экранирования плазмонной среды. При попытке моделирования спектров данных частиц в рамках локального приближения видно, что резонансная частота совершенно не соответствует экспериментальным значениям при выбранных условиях и не изменяется при варьировании диаметра частиц (рис. 3.18, 3.19). В дополнение к этому, сравнение данных результатов позволяет делать выводы о некоторой зависимости

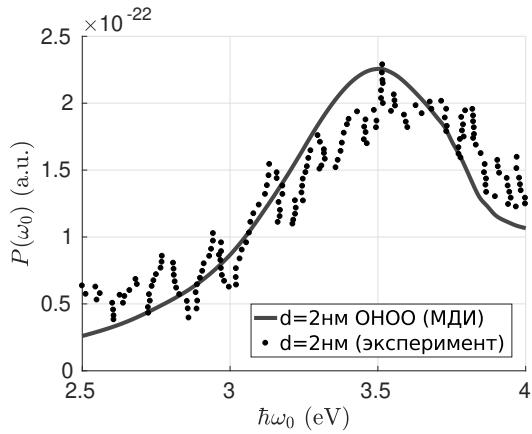


Рисунок 3.16 — Экспериментальный и расчетный EELS-спектры для Ag наносферы диаметром  $d = 2$  нм, внедренной в кварц. Расчеты проводились в рамках МДИ-ОНОО.

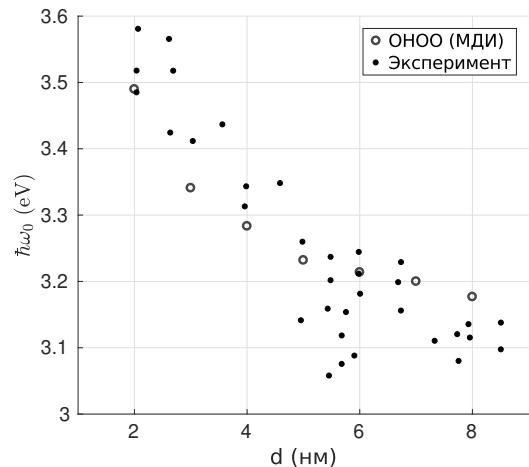


Рисунок 3.17 — Экспериментальная и расчетная зависимости резонансной частоты  $\hbar\omega_0$  от диаметра сферической Ag частицы диаметра  $d$ , внедренной в кварц (EELS). Расчеты проводились в рамках МДИ-ОНОО.

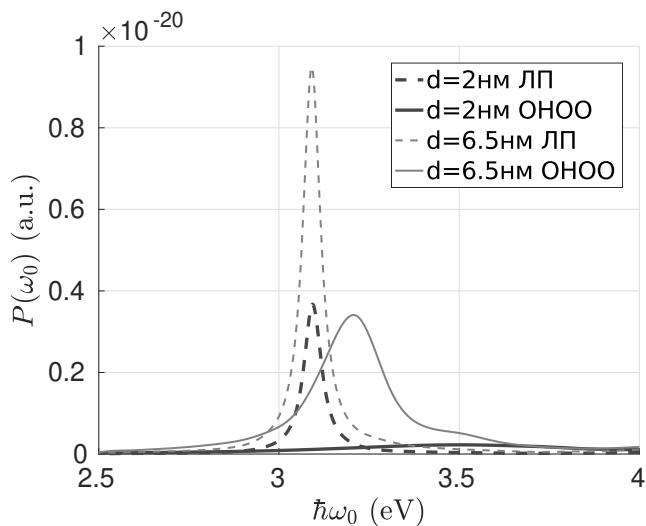


Рисунок 3.18 — Спектр EELS в рамках МДИ для Ag наносферами диаметрами 2 нм и 6.5 нм в кварцевой структуре. Локальное приближение (ЛП) — пунктирные линии, ОНОО-приближение — сплошные линии.

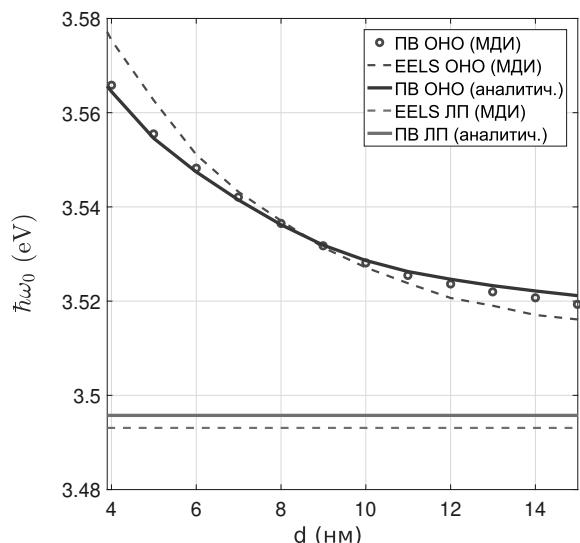


Рисунок 3.19 — Зависимость резонансной частоты  $\hbar\omega_0$  от диаметра сферической Ag частицы  $d$  в вакууме для случаев её возбуждения плоской волной (ПВ) и электроном (EELS) в локальном и ОНОО-приближениях.

свойств плазмонных резонансов в частицах от внешней среды. Так, резонансная частота в вакууме для частицы  $d = 8\text{нм}$  примерно равна  $3.54\text{эВ}$ , тогда как в кварце это значение составляет примерно  $3.2\text{эВ}$ . Кроме того, при изменении диаметра частицы с  $8$  до  $4\text{нм}$  в вакууме в рамках ОНОО резонансная частота изменяется не более, чем на  $0.04\text{эВ}$ , тогда как для тех же диаметров частицы в кварцевой структуре частота сдвигается в коротковолновую область более, чем на  $0.1\text{эВ}$ , и при дальнейшем уменьшении  $d$  ее значения вплотную приближаются к таковым в вакууме. Таким образом, величиной сдвига резонансной частоты, происходящей в том числе благодаря эффекту нелокального экранирования, нельзя пренебрегать при моделировании плазмонных наноструктур. Учитывая, что данные результаты получены для сферической частицы, особенно важным представляется дальнейшая разработка и развитие математических моделей с учетом ЭНЛ для более сложных структур.

### 3.1.7 Обсуждение результатов

Подведем промежуточный итог. Видно, что результатом учета эффекта нелокальности как в задаче EELS, так и в задаче дифракции плоской волны является сдвиг резонансной частоты в высокочастотную область спектра при уменьшении диаметра частицы  $d$ , причем данный эффект не имеет места в локальном приближении. Эти результаты полностью согласуются с экспериментальными данными и аналитическим решением ОНОО для дифракции плоской волны на сфере, в которых так же наблюдается сдвиг резонансной частоты [8; 21]. Сравнение с аналитическими решениями и экспериментальными данными подтверждает, что предложенный подход на основе гибридной схемы МДИ позволяет изучать спектры дифракции плоских волн и электронных пучков на плазмонных наноструктурах, в том числе с учетом ЭНЛ. В общем случае предложенный численный подход позволяет исследовать частицы и структуры несферической формы. В связи с этим полученные результаты могут быть использованы в качестве основы для построения новых вычислительных схем для анализа таких актуальных в приложениях наноструктур, как одиночные плазмонные диски, а так же группы частиц — димеры, тримеры и кластеры.

### 3.2 Димеры в однородной среде

#### 3.2.1 Постановка задачи

Перейдем к рассмотрению более сложной задачи анализа свойств плазмонных димеров, часто встречающихся в приложениях, и покажем, что такие задачи также разрешимы в рамках предложенной гибридной схемы МДИ. Пусть теперь рассматриваются две частички  $D_{i1}$  и  $D_{i2}$  с расстоянием  $d_r$  между ними, а вся структура по-прежнему полностью находится в однородном пространстве  $D_0$ . По аналогии с нелокальной постановкой задачи для одиночной частицы (2.30), поставим задачу дифракции в достаточно общем виде, предполагая, что начало декартовой системы координат находится в центре зазора между двумя частичками, а оси декартовой и соответствующей ей сферической систем координат направлены произвольно:

$$\begin{aligned}
 \text{rot} \mathbf{H}_Q(M) &= jk (\varepsilon_{T,Q} \mathbf{E}_Q(M) + \xi_Q^2 \text{graddiv} \mathbf{E}_{L,Q}(M)), \\
 \text{rot} \mathbf{E}_Q(M) &= -jk \mu_Q \mathbf{H}_Q(M), \\
 \mathbf{E}_Q(M) &= \mathbf{E}_{T,Q}(M) + \mathbf{E}_{L,Q}(M), \\
 M \in D_{iQ}, \quad Q &= 1,2, \\
 \\ 
 \text{rot} \mathbf{H}_0(M) &= jk \varepsilon_0 \mathbf{E}_0(M), \\
 \text{rot} \mathbf{E}_0(M) &= -jk \mu_0 \mathbf{H}_0(M), \\
 \mathbf{E}_0(M) &= \mathbf{E}_0^S(M) + \mathbf{E}_0^{inc}(M), \\
 M \in D_0, \quad &
 \end{aligned} \tag{3.6}$$

$$\begin{aligned}
 \mathbf{n}_P \times [\mathbf{E}_Q(P) - \mathbf{E}_0^S(P)] &= \mathbf{n}_P \times \mathbf{E}_0^{inc}(P), \\
 \mathbf{n}_P \times [\mathbf{H}_Q(P) - \mathbf{H}_0^S(P)] &= \mathbf{n}_P \times \mathbf{H}_0^{inc}(P), \\
 \mathbf{n}_P \cdot \varepsilon'_Q \mathbf{E}_Q(P) &= \mathbf{n}_P \cdot \varepsilon_0 \mathbf{E}_0(P), \quad P \in \partial D_{iQ}, \quad Q = 1,2,
 \end{aligned}$$

$$\lim_{r \rightarrow \infty} r \left( \sqrt{\varepsilon_0} \mathbf{E}_0^S(M) \times \frac{\mathbf{r}}{r} - \sqrt{\mu_0} \mathbf{H}_0^S(M) \right) = 0, \quad r = |M| \rightarrow \infty.$$

Здесь индекс  $Q = 1,2$  всюду означает принадлежность величин к первой либо второй частице димера. Полями внешнего возбуждения без изменений являются либо поле плоской волны (2.12), либо поле движущегося прямолинейно и равномерно точечного заряда (3.1), траектория которого не пересекает границы ни одной из частиц. Соответственно, справедливы все замечания, сделанные в начале настоящей главы для задач с учетом ЭНЛ, который теперь необходимо учитывать в двух областях  $D_{iQ}$ .

### 3.2.2 Особенности реализации численного алгоритма МДИ в случае двух частиц

При построении вычислительной схемы будем в целом следовать алгоритму, изложенному в п. 3.1.4. Основные отличия заключаются в том, что внутри каждой частицы будет расположен свой набор «внешних» (2.23) и «внутренних» (2.27) источников, в том числе «продольных» (2.31), и граничные условия должны аппроксимироваться на поверхности каждой из частиц, что приводит к следующему виду ячейки системы уравнений:

$$\begin{aligned} \varepsilon' \left( \mathbf{E}_{T,Q}^{N_Q}(P_l) + \mathbf{E}_{L,Q}^{N_Q}(P_l) \right) \cdot \hat{\mathbf{n}}_{P_l} &= \varepsilon_0 \left( \mathbf{E}_{0,N_{1+2}}^S(P_l) + \mathbf{E}_0^0(P_l) \right) \cdot \hat{\mathbf{n}}_{P_l}, \\ \left( \mathbf{E}_{T,Q}^{N_Q}(P_l) + \mathbf{E}_{L,Q}^{N_Q}(P_l) \right) \cdot \hat{\mathbf{t}}_{P_l} &= \left( \mathbf{E}_{0,N_{1+2}}^S(P_l) + \mathbf{E}_0^0(P_l) \right) \cdot \hat{\mathbf{t}}_{P_l}, \\ \left( \mathbf{E}_{T,Q}^{N_Q}(P_l) + \mathbf{E}_{L,Q}^{N_Q}(P_l) \right) \cdot \hat{\mathbf{t}}_{P_l} &= \left( \mathbf{E}_{0,N_{1+2}}^S(P_l) + \mathbf{E}_0^0(P_l) \right) \cdot \hat{\mathbf{t}}_{P_l}, \\ \mathbf{H}_{i,Q}^{N_Q}(P_l) \cdot \hat{\mathbf{t}}_{P_l} &= \left( \mathbf{H}_{0,N_{1+2}}^S(P_l) + \mathbf{H}_0^0(P_l) \right) \cdot \hat{\mathbf{t}}_{P_l}, \\ \mathbf{H}_{i,Q}^{N_Q}(P_l) \cdot \hat{\mathbf{t}}_{P_l} &= \left( \mathbf{H}_{0,N_{1+2}}^S(P_l) + \hat{\mathbf{H}}_0^0(P_l) \right) \cdot \hat{\mathbf{t}}_{P_l}, \quad \{P_l\}_{l=1}^K \in \partial D_{iQ}, \quad Q = 1,2. \end{aligned} \tag{3.7}$$

При этом предполагается, что решение для рассеянного поля  $\mathbf{E}_{0,N_{1+2}}^S, \mathbf{H}_{0,N_{1+2}}^S$ , где  $N_{1+2} = N_1 + N_2$  – общее число источников для обеих частиц, конструируется на основе полей «внешних» дискретных источников обеих частиц по аналогии с (2.26):

$$\begin{aligned} \mathbf{E}_{N_{1+2}}^S(M) &= \sum_{n=1}^{N_{1+2}=N_1+N_2} \sum_{\alpha=x,y,z} \left( p_{\alpha,n}^0 \frac{j}{k\varepsilon_0\mu_0} \text{rotrot} \mathbf{A}_{\alpha,n}^e + q_{\alpha,n}^0 \frac{1}{\varepsilon_0} \text{rot} \mathbf{A}_{\alpha,n}^e \right), \\ \mathbf{H}_{N_{1+2}}^S(M) &= \frac{j}{k\mu_0} \text{rot} \mathbf{E}_{N_{1+2}}^S(M, M_n), \end{aligned}$$

тогда как внутреннее поле в каждой частице моделируется лишь с помощью источников данной  $Q$ -й частицы:

$$\begin{aligned}\mathbf{E}_T^{N_Q}(M) &= \sum_{n=1}^{N_Q} \sum_{\alpha=x,y,z} (p_{\alpha,n}^T \mathbf{E}_{\alpha,T}^e(M, M_n) + q_{\alpha,n}^T \mathbf{E}_{\alpha,T}^h(M, M_n)), \\ \mathbf{H}_i^{N_Q}(M) &= \sum_{n=1}^{N_Q} \sum_{\alpha=x,y,z} (p_{\alpha,n}^T \mathbf{H}_{\alpha,i}^e(M, M_n) + q_{\alpha,n}^T \mathbf{H}_{\alpha,i}^h(M, M_n)), \\ \mathbf{E}_L^{N_Q}(M) &= \sum_{n=1}^{N_Q} \sum_{\alpha=j_0, \cos \varphi, \sin \varphi} p_{\alpha,n}^L \mathbf{E}_{L,\alpha}(M, M_n).\end{aligned}$$

Таким образом, в данной схеме мы исходим из предположения, что частицы взаимодействуют только посредством рассеянного поля без взаимодействия через внутренние поля. Такая схема для задач дифракции на димерах является классической в рамках МДИ. Следует отметить, что возможен и принципиально иной подход, когда «внутренние» источники для каждой частицы являются общими, строятся на основе сферических функций Ханкеля для поперечных волн и располагаются во внешней области определенным образом, с привлечением комплексного продолжения оси  $z$ . Данный подход показал высокую эффективность в случае полностью осесимметричных задач, в которых происходит решение ряда одномерных задач для каждой гармоники Фурье внешнего возбуждения. Однако в настоящее время для его применения необходимо, чтобы пара либо цепочка рассматриваемых частиц сама образовывала осесимметричную систему [106]. С целью преодоления этого ограничения в рамках гибридной схемы МДИ рассматриваются полностью трехмерные задачи, и на данный момент используется классический метод взаимодействия между частицами димера. Первое из этих обстоятельств в будущем позволит построить на основе гибридной схемы МДИ модели кластеров частиц на подложке.

Что касается диаграммы рассеяния и характеристического спектра потерь энергии электронами, то они строятся полностью аналогично решению для случая одиночной частицы с применением приведенной выше новой формулы для рассеянного поля.

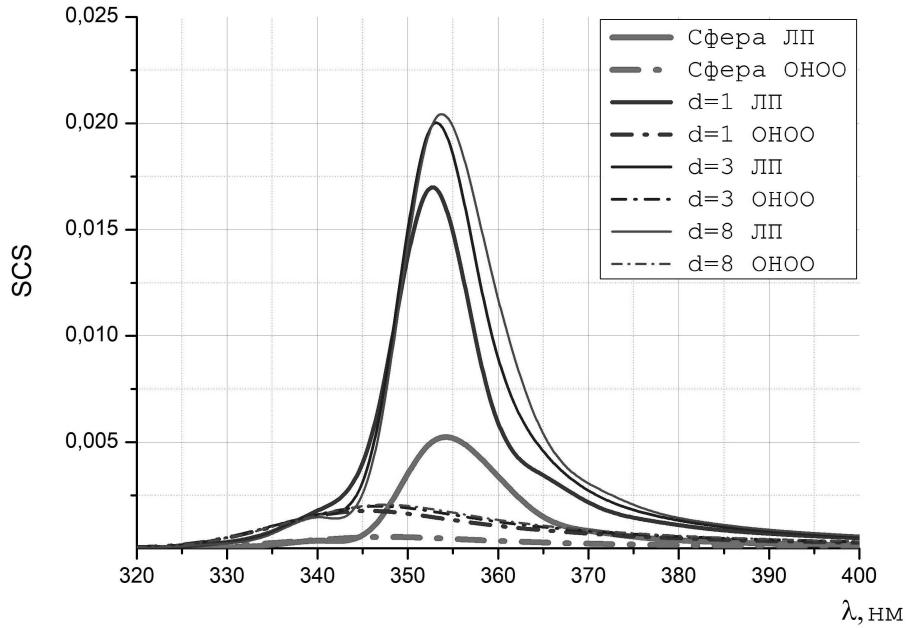


Рисунок 3.20 — SCS для одиночной Ag сферы и димеров из Ag сфер диаметром 4нм. Варьируется величина зазора  $d$ (нм). Внешнее поле: Р-поляризованный плоский волна, падающий вдоль оси  $z$ .

### 3.2.3 Влияние величины зазора на свойства решения

В качестве примера рассмотрим пару сферических серебряных наночастиц диаметром 4нм, и сперва проведем ось  $z$  через их центры. Пусть вдоль оси  $z$  распространяется плоская Р-поляризованный волна ( $\theta_0 = 0, \varphi_t = 0$ ). Будем менять размер зазора между частицами  $d_r$  с 1 до 8 нанометров (на рисунках будем для него обозначение  $d$ , которое не следует путать с диаметром частицы), и сравним полученные сечения рассеяния с результатом для одиночной сферы. Соответствующие результаты в локальном и ОНОО-приближениях представлены на рис. 3.20.

Прокомментируем полученные результаты. Во-первых, видно, что уменьшение зазора между частицами при указанном внешнем возбуждении ведет к небольшому сдвигу резонансной частоты в коротковолновую область спектра, что согласуется с результатами других авторов [119; 120]. Данный эффект имеет место как с учетом ЭНЛ, так и без него. Во-вторых, как и ожидалось, амплитуда рассеяния димера значительно выше, чем амплитуда рассеяния одиночной сферы. Кроме того, в силу размеров как частиц, так и зазора между ними, видно,

что учет ЭНЛ совершенно необходим при анализе таких систем. Невязка решения при числе точек коллокаций и источников, соответствующих удвоенным величинам в решенной ранее задаче с одиночной сферой, составила менее 2%. Однако поведение величины апостериорной оценки точности ожидаемо демонстрирует рост при уменьшении зазора между частицами. Так, для величины зазора  $d = 0.4\text{нм}$  при сохранении размерности матрицы системы невязка составила 5%. Это происходит не только благодаря тому, что с математической точки зрения задача становится более вычислительно сложной, но и благодаря тому, что при таких пространственных масштабах необходимо учитывать чисто квантовые явления, такие, как туннельный эффект, который находится за текущими рамками применимости теории обобщенного нелокального оптического отклика. С учетом того, что чисто квантовые вычислительные подходы сейчас могут быть применены для анализа субнанометровых систем, можно утверждать, что их применение будет являться наиболее корректным для зазоров менее 0.5нм. В то же время, ОНОО вполне разумно использовать при анализе систем с зазорами порядка 0.5 – 4нм, тогда как локальное приближение вполне адекватно описывает процессы, происходящие при более высоких значениях  $d_r$  [16; 22; 37]. Отметим, что даже при величине зазора более 4нм в случае характерного размера частиц 10нм все равно следует применять подходы на основе ОНОО, такие, как предлагаемая гибридная схема метода дискретных источников. И наоборот, даже если частицы димера являются достаточно большими (более пары десятков нанометров), при малых расстояниях между ними также следует использовать подходы на основе ОНОО.

Теперь построим спектр EELS для уже рассмотренной системы. Отметим, что в рамках гибридной схемы благодаря рассматриваемой конфигурации источников и сшивке полей на всей поверхности рассеивателя матрица переопределенной системы уравнений вида (3.7) как для одиночной частицы, так и для димера может быть составлена однократно для одной длины волны, и с ее помощью могут быть получены решения для всего набора внешних возбуждений – как для плоских волн, падающих под различными углами, так и для электронов. Как уже отмечено выше, в задачах EELS требуется большее количество источников и точек коллокаций, однако при таких матрицах задачи дифракции плоских волн также решаются с высокой степенью точности, что позволяет не проводить отдельных расчетов.

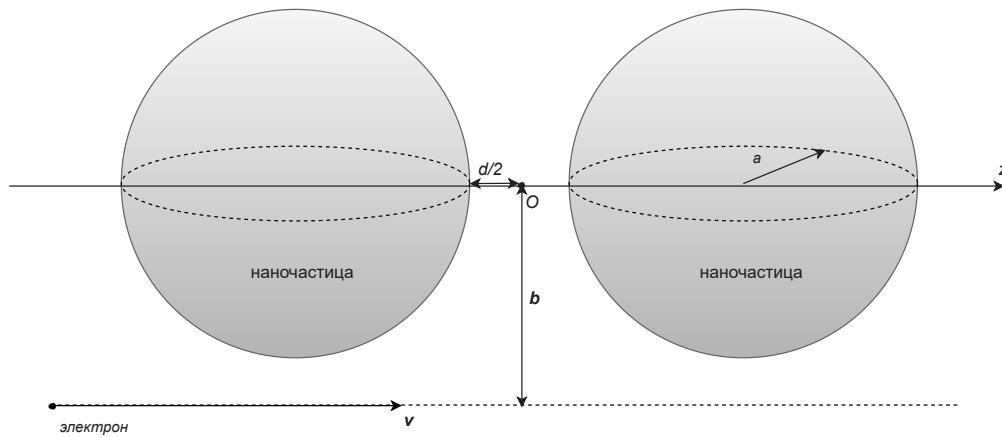


Рисунок 3.21 — Геометрия задачи EELS. Траектория электрона проходит вблизи димера.

Пусть электрон движется вдоль оси  $z$  на расстоянии 2.3 нм от системы частиц (см. геометрию на рис. 3.21). Тогда спектры EELS для соответствующих расстояний между наносферами в сравнении со спектром одиночной сферы примут вид, приведенный на рис. 3.23. Хорошо видно, что в случае  $d_r = 8$  нм при диаметре частиц в 4 нм частицы находятся довольно далеко друг от друга и практически не взаимодействуют, вследствие чего электрон теряет энергию на резонансной частоте одиночной сферы с ровно вдвое большей вероятностью. Это обстоятельство также свидетельствует в пользу корректности проведенных расчетов. В целом, проявляются те же свойства плазмонных резонансов, что и в случае дифракции плоской волны. Невязка решения системы в худшем случае (для минимального зазора) составила 12%.

В завершение текущего раздела рассмотрим другую геометрию задачи. А именно, проведем ось  $z$  перпендикулярно прямой, на которой лежат центры сфер димера, на одинаковом расстоянии от них. Пусть для определенности сферы лежат на оси  $x$ . Переход к данной геометрии задачи (см. рис. 3.22) постепенно подводит нас к дальнейшему обобщению гибридной схемы на случай задач с подложкой, которой будет посвящен заключительный раздел настоящей главы.

В этом случае величина прицельного параметра формально может быть приравнена к 0, а его роль возьмет на себя величина  $d_r/2$ . Для такой конфигурации были получены спектры EELS, представленные на рис. 3.24. В данном случае электрон теряет энергию с наибольшей вероятностью, когда частицы

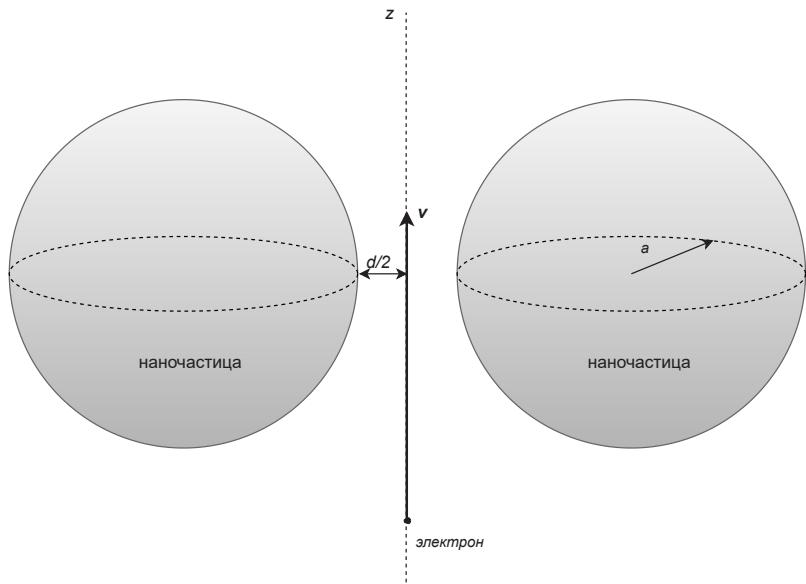


Рисунок 3.22 — Геометрия задачи EELS. Траектория электрона проходит через центр зазора между частицами димера.

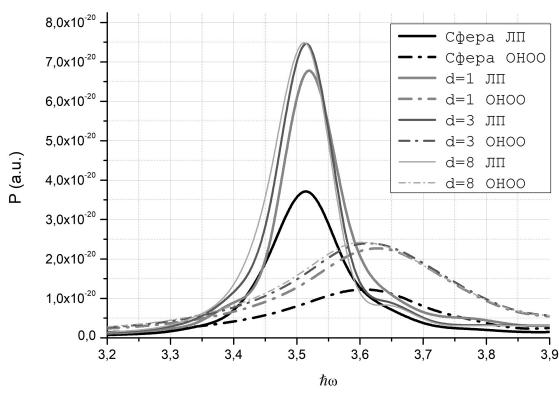


Рисунок 3.23 — Спектр EELS для Ag сферы и для димера из двух Ag сфер радиусом 2 нм с варьируемым зазором  $d$  для первой геометрии задачи. Сплошные линии – без учета ЭНЛ. Пунктирные линии – в рамках ОНОО.

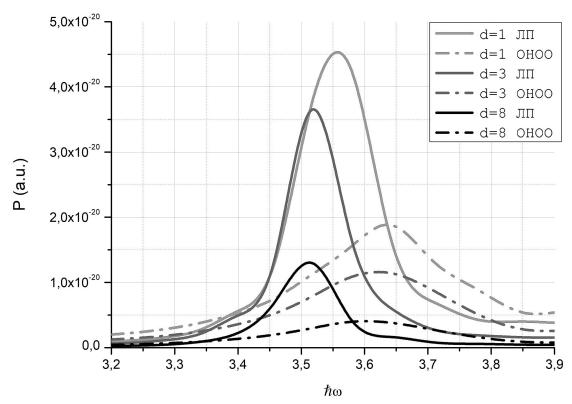


Рисунок 3.24 — Спектр EELS для димера Ag сфер радиусом 2 нм для второй геометрии. Варьируется величина зазора  $d$ .

находятся друг к другу ближе всего, в отличие от предыдущего случая. Это связано с тем, что частицы не только находятся близко друг к другу, но и близко к траектории электрона. По-прежнему наблюдается коротковолновый сдвиг резонансной частоты в ОНОО-приближении, а при удалении частиц друг от друга (и от электрона) наблюдается ее стремление к резонансной частоте одиночной сферы. Невязка решения для минимального зазора при той же размерности матрицы здесь составила 9%.

### 3.3 Структуры в средах с подложкой

Завершим настоящую главу обобщением предложенной гибридной схемы МДИ и моделей на ее основе на случай наличия подложки в среде. Решение данного круга задач является совершенно необходимо в приложениях, поскольку наноструктуры, как правило, располагаются на некоторой поверхности, которая может оказывать существенное влияние на их рассеивающие свойства. В связи с тем, что в ряде численных подходов строгий учет подложки является затрудненным, а также в целом в силу весьма небольшого количества публикаций, посвященных развитию вычислительных методов анализа задач на подложке в присутствие нелокальных эффектов, построение и дальнейшее развитие моделей, предлагаемых в настоящей главе, представляется особенно актуальным.

#### 3.3.1 Постановка задачи

Перейдём к построению математической модели дифракции плоской линейно поляризованной волны на плазмонной наночастице, расположенной вблизи границы раздела двух сред с учетом эффекта нелокальности. Пусть задана среда с двумя однородными изотропными слоями  $D_{0,1}$  и плоскостью границы раздела слоев  $\Sigma$ . Пусть вблизи  $\Sigma$  в верхнем полупространстве  $D_0$  находится однородная проницаемая частица  $D_i$  с гладкой границей  $\partial D_i \subset C^2$ .

Введем декартову систему координат  $\{x,y,z\}$ , в которой ось  $z$  направлена перпендикулярно границе раздела полупространств  $\{\Sigma : z = 0\}$  в сторону  $D_0$  (рис. 3.25) [39].

Пусть все необходимые параметры системы, включая длину волны  $\lambda$ , показатели преломления сред  $n_0, n_1$  и рассеивателя  $n_i$  заданы. Тогда математическая постановка задачи рассеяния плоской волны, падающей под углом  $\pi - \theta_0$  относительно оси  $z$  на частицу  $D_i$ , с учетом ЭНЛ принимает вид

$$\begin{aligned}
& \text{rot} \mathbf{H}_i(M) = jk (\varepsilon_T \mathbf{E}_i(M) + \xi^2 \text{graddiv} \mathbf{E}_L(M)), \quad \mathbf{B} = D_i, \\
& \text{rot} \mathbf{E}_i(M) = -jk \mu_i \mathbf{H}_i(M), \\
& \text{rot} \mathbf{H}_\zeta(M) = jk \varepsilon_\zeta \mathbf{E}_\zeta(M), \quad \mathbf{B} = D_\zeta, \quad \zeta = 0,1, \\
& \text{rot} \mathbf{E}_\zeta(M) = -jk \mu_\zeta \mathbf{H}_\zeta(M) \\
& \mathbf{E}_i(M) = \mathbf{E}_T(M) + \mathbf{E}_L(M), \\
& \mathbf{E}_0(M) = \mathbf{E}_0^S(M) + \mathbf{E}_0^0(M), \\
& \mathbf{E}_1(M) = \mathbf{E}_1^S(M) + \mathbf{E}_1^0(M), \\
& \hat{\mathbf{n}}_P \times (\mathbf{E}_i(P) - \mathbf{E}_0(P)) = 0, \quad \mathbf{e}_z \times (\mathbf{E}_0(P) - \mathbf{E}_1(P)) = 0, \quad P \in \Sigma, \\
& \hat{\mathbf{n}}_P \times (\mathbf{H}_i(P) - \mathbf{H}_0(P)) = 0, \quad P \in \partial D_i, \quad \mathbf{e}_z \times (\mathbf{H}_0(P) - \mathbf{H}_1(P)) = 0, \quad P \in \Sigma, \\
& \hat{\mathbf{n}}_P \cdot \varepsilon' \mathbf{E}_i(P) = \hat{\mathbf{n}}_P \cdot \varepsilon_0 \mathbf{E}_0(P), \\
& \lim_{r \rightarrow \infty} r \cdot (\sqrt{\varepsilon_0} \mathbf{E}_0^S \times \frac{\mathbf{r}}{r} - \sqrt{\mu_0} \mathbf{H}_0^S) = 0, \quad r = |M| \rightarrow \infty, \quad z > 0, \\
& (|\mathbf{E}_1^S|, |\mathbf{H}_1^S|) = o(\exp\{-|\text{Im} k_1|r\}), \quad z < 0.
\end{aligned} \tag{3.8}$$

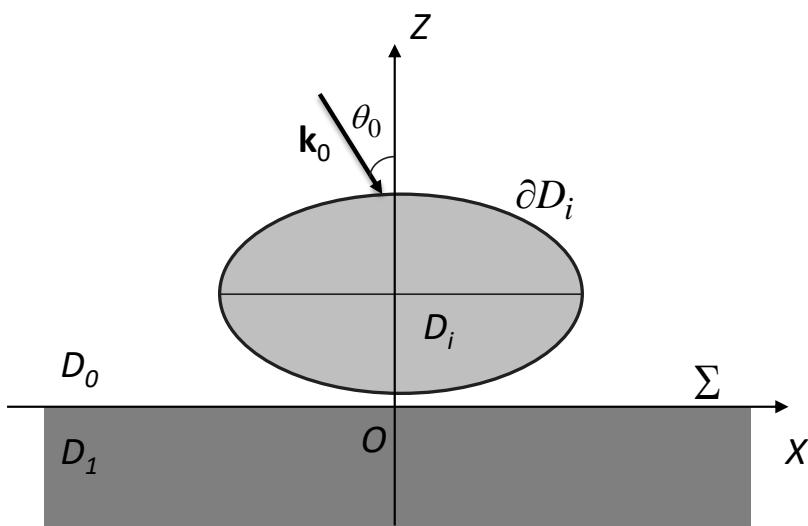


Рисунок 3.25 — Геометрия задачи дифракции плоской линейно поляризованной волны на частице в среде с подложкой.

Здесь  $\{\mathbf{E}_\zeta, \mathbf{H}_\zeta\}$  – полное поле в соответствующей области  $D_\zeta$ ,  $\zeta = \{0,1,i\}$ ,  $\{\mathbf{E}_\zeta^S, \mathbf{H}_\zeta^S\}$  – рассеянное поле,  $\{\mathbf{E}_\zeta^0, \mathbf{H}_\zeta^0\}$  – поле внешнего возбуждения,  $\hat{\mathbf{n}}_P$  – единичная нормаль к поверхности  $\partial D_i$ ,  $k_\zeta = k\sqrt{\epsilon_\zeta\mu_\zeta}$ ,  $M$  – некоторая точка соответствующего полупространства  $D_\zeta$ . Параметры сред удовлетворяют соотношениям  $\text{Im}\epsilon_0, \mu_0 = 0$ ,  $\text{Im}\epsilon_1, \mu_1 < 0$ . Тогда поставленная граничная задача (3.8) имеет единственное решение.

Прежде, чем строить приближенное решение для рассеянных полей, запишем известное решение задачи дифракции плоской линейно поляризованной волны на системе воздух–подложка в отсутствие частицы с учетом выбранной временной зависимости  $\exp(j\omega t)$  [107]. Пусть  $\mathbf{e}_x, \mathbf{e}_y, \mathbf{e}_z$  – базис введенной ранее декартовой системы координат,  $\theta_1$  – угол, под которым преломленная волна входит в подложку по закону Снеллиуса:  $n_0 \sin \theta_0 = n_1 \sin \theta_1$ . Введем следующие обозначения:  $\mathbf{E}_\zeta^{0,P(-)}, \mathbf{H}_\zeta^{0,P(-)}$  – векторы напряженности электромагнитного поля плоской Р-поляризованной волны, падающей под углом  $\pi - \theta_0$  относительно оси  $z$  на границу раздела сред;  $\mathbf{E}_\zeta^{0,P(+)}, \mathbf{H}_\zeta^{0,P(+)}$  – соответствующие векторы напряженности плоской волны, отраженной от границы раздела сред;  $\zeta$  – индекс полупространства. Аналогичные обозначения введем для S-поляризованной волны:  $\mathbf{E}_\zeta^{0,S(-)}, \mathbf{H}_\zeta^{0,S(-)}, \mathbf{E}_\zeta^{0,S(+)}, \mathbf{H}_\zeta^{0,S(+)}$ . Выражения для этих величин принимают следующий вид:

$$\begin{aligned}\mathbf{E}_{0,\zeta}^{P(\pm)} &= (\mp \mathbf{e}_x \cos \theta_\zeta \cos \varphi_t \mp \mathbf{e}_y \cos \theta_\zeta \sin \varphi_t + \mathbf{e}_z \sin \theta_\zeta) \cdot \gamma_\zeta^{(\pm)}, \\ \mathbf{H}_{0,\zeta}^{P(\pm)} &= (\mathbf{e}_x \sin \varphi_t - \mathbf{e}_y \cos \varphi_t) \cdot n_\zeta \cdot \gamma_\zeta^{(\pm)}, \\ \mathbf{E}_{0,\zeta}^{S(\pm)} &= (-\mathbf{e}_x \sin \varphi_t + \mathbf{e}_y \cos \varphi_t) \cdot \gamma_\zeta^{(\pm)}, \\ \mathbf{H}_{0,\zeta}^{S(\pm)} &= (\mp \mathbf{e}_x \cos \theta_\zeta \cos \varphi_t \mp \mathbf{e}_y \cos \theta_\zeta \sin \varphi_t + \mathbf{e}_z \sin \theta_\zeta) \cdot n_\zeta \cdot \gamma_\zeta^{(\pm)}.\end{aligned}$$

Здесь  $\gamma_\zeta^{(\pm)} = \exp\{-jk_\zeta(x \sin \theta_\zeta \cos \varphi_t + y \sin \theta_\zeta \sin \varphi_t \pm z \cos \theta_\zeta)\}$ ,  $\varphi_t$  – угол поворота плоскости падения плоской волны,  $n_\zeta = \sqrt{\epsilon_\zeta\mu_\zeta}$  – показатель преломления в соответствующем полупространстве  $D_\zeta$ ,  $\zeta = 0,1$ . Выражения для коэффициентов Френеля

$$R_P = \frac{n_1 \cos \theta_0 - n_0 \cos \theta_1}{n_1 \cos \theta_0 + n_0 \cos \theta_1}, \quad R_S = \frac{n_0 \cos \theta_0 - n_1 \cos \theta_1}{n_0 \cos \theta_0 + n_1 \cos \theta_1}$$

используются для записи поля внешнего возбуждения в верхнем полупространстве, которое будет удовлетворять условиям сопряжения на границе раздела

сред  $\Sigma$ :

$$\begin{aligned}\mathbf{E}_0^{0(P,S)} &= \mathbf{E}_0^{0,P,S(-)} + R_{P,S} \cdot \mathbf{E}_0^{0,P,S(+)}, \quad z \geq 0, \\ \mathbf{H}_0^{0(P,S)} &= \mathbf{H}_0^{0,P,S(-)} + R_{P,S} \cdot \mathbf{H}_0^{0,P,S(+)}, \quad z \geq 0.\end{aligned}\tag{3.9}$$

Таким образом, поле внешнего возбуждения в верхнем полупространстве записывается как сумма падающей и отраженной волн:  $\mathbf{E}_0^0(M) = \mathbf{E}_0^{0,P(-)} + \mathbf{E}_0^{0,P(+)}$ ,  $\mathbf{H}_0^0(M) = \mathbf{H}_0^{0,P(-)} + \mathbf{H}_0^{0,P(+)}$ . Аналогичным образом можно записать поле прошедшей в подложку волны, однако рассмотрение таких задач выходит за рамки настоящей работы.

### 3.3.2 Метод решения и его компьютерная реализация

Предложенная в разделе 2.3 гибридная схема МДИ может быть обобщена на случай задачи с подложкой, если вместо фундаментального решения уравнения Гельмгольца в однородной среде  $\Psi(M, M_n)$  использовать тензор Грина полупространства для построения полей внешних ДИ [121]. Тензор Грина позволяет аналитически учесть взаимодействие между частицей и поверхностью подложки. Для приведенной постановки задачи (3.8) он принимает вид [71] :

$$\widehat{\mathbf{G}}^{e,h}(M, M_n) = \begin{bmatrix} G^{e,h} & 0 & 0 \\ 0 & G^{e,h} & 0 \\ \partial g^{e,h}/\partial x_M & \partial g^{e,h}/\partial y_M & G^{h,e} \end{bmatrix}.$$

Компоненты тензора являются интегральными представлениями Зоммерфельда:

$$G^{e,h}(M, M_n) = \int_0^\infty J_0(\lambda r) \mathbf{v}_{11}^{e,h}(\lambda, z, z_n) \lambda d\lambda, \quad g^{e,h}(M, M_n) = \int_0^\infty J_0(\lambda r) \mathbf{v}_{31}^{e,h}(\lambda, z, z_n) \lambda d\lambda.$$

Здесь использованы следующие обозначения:  $r^2 = (x - x_n)^2 + (y - y_n)^2$ , где  $\{x_n, y_n, z_n\}$  – координаты точки источника  $M_n$  во введенной декартовой системе координат,  $M(x, y, z)$  – точка наблюдения, в которой будут вычисляться поля источников,  $R_{MM_n}^2 = r^2 + (z - z_n)^2$ ,  $J_0(\cdot)$  – цилиндрическая функция Бесселя, индексы  $e$  и  $h$  соответствуют компонентам тензора электрического и магнитного

типов, соответственно. Спектральные функции электрического и магнитного типов  $\mathbf{v}_{11}^{e,h}, \mathbf{v}_{31}^{e,h}$ , обеспечивающие выполнение условий сопряжения на границе раздела сред  $\Sigma$ , имеют следующие представления:

$$\mathbf{v}_{11}^{e,h}(\lambda, z, z_n) = \begin{cases} \frac{\exp(-\eta_0|z - z_n|)}{\eta_0} + A_{11}^{e,h}(\lambda, z_n) \cdot \exp(-\eta_0 z), & z_n > 0, z \geq 0, \\ B_{11}^{e,h}(\lambda, z_n) \cdot \exp(\eta_1 z), & z_n > 0, z \leq 0, \end{cases}$$

$$\mathbf{v}_{31}^{e,h}(\lambda, z, z_n) = \begin{cases} A_{31}^{e,h}(\lambda, z_n) \cdot \exp(-\eta_0 z), & z_n > 0, z \geq 0, \\ B_{31}^{e,h}(\lambda, z_n) \cdot \exp(\eta_1 z), & z_n > 0, z \leq 0. \end{cases}$$

Здесь  $\eta_\zeta^2 = \lambda^2 - k_\zeta^2$ ,  $k_\zeta$  – волновое число в  $D_\zeta$ . Спектральные коэффициенты  $A_{mn}^{e,h}, B_{mn}^{e,h}$  определяются из условий непрерывности спектральных функций:

$$[\mathbf{v}_{11}^e] = \left[ \frac{1}{\mu} \frac{\partial \mathbf{v}_{11}^e}{\partial z} \right] = 0; \quad [\mathbf{v}_{11}^h] = \left[ \frac{1}{\epsilon} \frac{\partial \mathbf{v}_{11}^h}{\partial z} \right] = 0;$$

$$\left[ \frac{1}{\mu} \mathbf{v}_{31}^e \right] = \left[ \frac{1}{\epsilon \mu} \frac{\partial \mathbf{v}_{31}^e}{\partial z} \right] + \left[ \frac{1}{\epsilon \mu} \right] \mathbf{v}_{11}^e = 0; \quad \left[ \frac{1}{\epsilon} \mathbf{v}_{31}^h \right] = \left[ \frac{1}{\epsilon \mu} \frac{\partial \mathbf{v}_{31}^h}{\partial z} \right] + \left[ \frac{1}{\epsilon \mu} \right] \mathbf{v}_{11}^h = 0.$$

Квадратными скобками  $[\cdot]$  обозначен скачок переменной при переходе через границу раздела сред  $z = 0$ . Из приведенных условий нетрудно получить явный вид спектральных коэффициентов:

$$A_{11}^{e,h}(\lambda, z_n) = \frac{\chi_0^{e,h} - \chi_1^{e,h}}{\chi_0^{e,h} + \chi_1^{e,h}} \cdot \frac{\exp(-\eta_0 z_n)}{\eta_0}, \quad B_{11}^{e,h}(\lambda, z_n) = \frac{2\chi_0^{e,h}}{\chi_0^{e,h} + \chi_1^{e,h}} \cdot \frac{\exp(-\eta_0 z_n)}{\eta_0},$$

$$A_{31}^{e,h}(\lambda, z_n) = \frac{2\kappa \cdot \exp(-\eta_0 z_n)}{(\chi_0^e + \chi_1^e)(\chi_0^h + \chi_1^h)}, \quad B_{31}^{e,h}(\lambda, z_n) = \left( \frac{\mu_1}{\mu_0}, \frac{\epsilon_1}{\epsilon_0} \right) \frac{2\kappa \cdot \exp(-\eta_0 z_n)}{(\chi_0^e + \chi_1^e)(\chi_0^h + \chi_1^h)},$$

$$\chi_\zeta^e = \frac{\eta_\zeta}{\mu_\zeta}, \quad \chi_\zeta^h = \frac{\eta_\zeta}{\epsilon_\zeta}, \quad \kappa = \frac{1}{\epsilon_0 \mu_0} - \frac{1}{\epsilon_1 \mu_1}.$$

Отметим, что поскольку в рассматриваемой постановке задачи частица полностью находится в верхнем полупространстве и не внедрена частично в подложку, мы можем опустить запись аналогичных соотношений для дискретных источников, геометрически расположенных в полу плоскости  $z < 0$ .

На основе введенного тензора Грина векторные потенциалы «внешних» ДИ для задачи с подложкой строятся следующим образом:

$$\begin{aligned} \mathbf{A}_{1,n}^{e,h} &= G^{e,h} \mathbf{e}_x + \partial g^{e,h} / \partial x_M \mathbf{e}_z, \\ \mathbf{A}_{2,n}^{e,h} &= G^{e,h} \mathbf{e}_y + \partial g^{e,h} / \partial x_M \mathbf{e}_z, \\ \mathbf{A}_{3,n}^{e,h} &= G^{h,e} \mathbf{e}_z, \end{aligned} \tag{3.10}$$

и заменяют собой систему (2.23) при решении граничной задачи дифракции в полупространстве. Выбранные таким образом «внешние» источники, помимо уравнений Максвелла, аналитически удовлетворяют условиям изучения на бесконечности, и следовательно, укладываются в концепцию квазирешения. Для упрощения вида дальнейших выкладок положим  $x_M = x, y_M = y, z_M = z$ .

Отметим, что при совпадении показателей преломления подложки и верхнего полупространства эти векторные потенциалы переходят в аналогичные для свободного пространства. В этом можно убедиться, явным образом получив для этого случая равенство нулю соответствующих коэффициентов в спектральных функциях и проинтегрировав оставшуюся часть в выражениях для компонент тензора Грина.

Вычислительная схема на основе метода дискретных источников, предложенная в пункте 3.1.4, не претерпевает принципиальных изменений в случае рассматриваемой задачи с подложкой. Численный расчет осложняется наличием интегралов Зоммерфельда в векторных потенциалах «внешних» ДИ, и, следовательно, в соответствующих полях ДИ [121]

$$\begin{aligned}\mathbf{E}_{0,\alpha}^e(M, M_n) &= \frac{j}{k\epsilon_0\mu_0} \text{rotrot} \mathbf{A}_{\alpha,n}^e, \\ \mathbf{E}_{0,\alpha}^h(M, M_n) &= \frac{1}{\epsilon_0} \text{rot} \mathbf{A}_{\alpha,n}^h, \\ \mathbf{H}_{0,\alpha}^{e,h}(M, M_n) &= \frac{j}{k\mu_0} \text{rot} \mathbf{E}_{\alpha,0}^{e,h}(M, M_n),\end{aligned}\quad (3.11)$$

и их линейной комбинации, использующейся для построения решения задачи:

$$\begin{aligned}\mathbf{E}_{0,N}^S(M) &= \sum_{n=1}^N \sum_{\alpha=1}^3 (p_{\alpha,n}^0 \mathbf{E}_{\alpha,0}^e(M, M_n) + q_{\alpha,n}^0 \mathbf{E}_{\alpha,0}^h(M, M_n)), \\ \mathbf{H}_{0,N}^S(M) &= \sum_{n=1}^N \sum_{\alpha=1}^3 (p_{\alpha,n}^0 \mathbf{H}_{\alpha,0}^e(M, M_n) + q_{\alpha,n}^0 \mathbf{H}_{\alpha,0}^h(M, M_n)).\end{aligned}\quad (3.12)$$

Интегралы в компонентах тензора Грина, вообще говоря, не берутся аналитически, и для их вычисления приходится использовать численные подходы. Одним из наиболее эффективных является подход, известный как «Double-exponential transformation», высокопроизводительная реализация которого доступна на языке низкого уровня FORTRAN и будет использована в настоящей работе [122].

Кроме того, вследствие замены системы «внешних» источников необходимо получить новое выражение для расчета диаграммы рассеяния  $\mathbf{F}^\zeta$ , которая

в соответствующем полупространстве  $\zeta = \{0,1\}$  определяется как

$$\frac{\mathbf{E}_\zeta^S(M)}{|\mathbf{E}_\zeta^0(M)|} = \frac{\exp\{-jk_\zeta R\}}{R} \mathbf{F}^\zeta(\theta, \theta_0, \varphi) + O(1/R^2), R = |M| \rightarrow \infty, M \in D_\zeta. \quad (3.13)$$

Метод дискретных источников позволяет получить выражения для диаграммы рассеяния как в верхнем, так и в нижнем полупространствах в явной форме в виде линейной комбинации элементарных функций, что позволяет избежать дополнительных затратных процедур интегрирования. Для этого необходимо проанализировать поведение компонент тензора Грина в дальней зоне при  $R \rightarrow \infty$ . Пользуясь асимптотикой цилиндрических функций и методом перевала для асимптотической оценки интегралов [123], нетрудно установить, что при  $z \geq 0$  справедливо следующее соотношение:

$$\begin{aligned} & \int_0^\infty J_0(\lambda r) f(\lambda, z_n) \exp(-\eta_0 z) \lambda d\lambda \xrightarrow{R \rightarrow \infty} \\ & \xrightarrow{R \rightarrow \infty} \frac{\exp(-jk_0 R)}{R} \cdot jk_0 \cos \theta \cdot f(k_0 \sin \theta, z_n) \cdot \exp(jk_0 \sin \theta (x_n \cos \varphi + y_n \sin \varphi)) \end{aligned} \quad (3.14)$$

Использованные в данном соотношении величины  $r, R, \eta_0$  были введены ранее при определении компонент тензора Грина. Аналогичное соотношение справедливо для интеграла с  $\exp(\eta_1 z)$  при  $z < 0$ :

$$\begin{aligned} & \int_0^\infty J_0(\lambda r) f(\lambda, z_n) \exp(\eta_1 z) \lambda d\lambda \xrightarrow{R \rightarrow \infty} \\ & \xrightarrow{R \rightarrow \infty} \frac{\exp(-jk_1 R)}{R} \cdot jk_1 |\cos \theta| \cdot f(k_1 \sin \theta, z_n) \cdot \exp(jk_1 \sin \theta (x_n \cos \varphi + y_n \sin \varphi)) \end{aligned} \quad (3.15)$$

Поскольку в данном случае рассматривается нижнее полупространство, в котором формально определенный  $\cos \theta$  является отрицательной величиной, то в процессе извлечения алгебраического корня из  $\eta_1 = \sqrt{\lambda^2 - k_1^2}$  при подстановке  $\lambda = k_1 \sin \theta$  возникает модуль  $|\cos \theta|$ . В соответствии с этими соотношениями компоненты тензора Грина в дальней зоне для обоих полупространств можно

переписать в форме:

$$\begin{aligned}\bar{G}^{e,h}(M, M_n) &= |\cos \theta| \cdot \exp\left(jk_\zeta \sin \theta (x_n \cos \varphi + y_n \sin \varphi)\right) \cdot v_{11}^{e,h}(k_\zeta \sin \theta, z = 0, z_n) \\ \bar{g}^{e,h}(M, M_n) &= |\cos \theta| \cdot \exp\left(jk_\zeta \sin \theta (x_n \cos \varphi + y_n \sin \varphi)\right) \cdot v_{31}^{e,h}(k_\zeta \sin \theta, z = 0, z_n)\end{aligned}\quad (3.16)$$

Так как в верхнем полупространстве  $D_0$  величина  $\cos \theta$  является положительной, а в формуле (3.15) для нижнего полупространства  $D_1$  фигурирует модуль этой величины, то в общем случае в (3.16) можно без ограничения общности использовать  $|\cos \theta|$ .

Поскольку в использованных в (3.16) спектральных функциях присутствует особенность при  $\eta_0 = 0$ , этот случай нужно рассмотреть подробнее. Используя явный вид спектральных коэффициентов, упростим выражение для  $v_{11}^{e,h}$  при  $z_n > 0, z \geq 0$ :

$$v_{11}^{e,h}(\lambda, z, z_n) = \frac{\exp(-\eta_0|z - z_n|)}{\eta_0} + \frac{\chi_0^{e,h} - \chi_1^{e,h}}{\chi_0^{e,h} + \chi_1^{e,h}} \cdot \frac{\exp(-\eta_0 z_n)}{\eta_0} \cdot \exp(-\eta_0 z), \quad z_n > 0, z \geq 0$$

Или, что то же самое для электрической спектральной функции:

$$v_{11}^e(\lambda, z, z_n) = \frac{\exp(-\eta_0|z - z_n|)}{\eta_0} + \frac{\mu_1 \eta_0 - \mu_0 \eta_1}{\mu_1 \eta_0 + \mu_0 \eta_1} \cdot \frac{\exp(-\eta_0 z_n)}{\eta_0} \cdot \exp(-\eta_0 z), \quad z_n > 0, z \geq 0$$

Тогда, полагая в соответствии с (3.16)  $z = 0$  в данном выражении и учитывая знак  $z_n$ , получим возможность вынести экспоненту  $\exp(-\eta_0 z_n)$  за скобки и сложить полученные дроби. Приводя дроби к общему знаменателю, увидим, что множитель  $\eta_0$  в нём сокращается:

$$v_{11}^e(\lambda, z = 0, z_n) = \frac{2\mu_1}{\mu_1 \eta_0 + \mu_0 \eta_1} \cdot \exp(-\eta_0 z_n), \quad z_n > 0, z \geq 0$$

Аналогичный результат справедлив для магнитной спектральной функции. Таким образом, показано отсутствие особенности при  $\eta_0 = 0$ , что говорит о корректности полученных формул. Так, если положить  $\lambda = k_0 \sin \theta$  в соответствии с (3.16) и воспользоваться определением  $\eta_0^2 = \lambda^2 - k_0^2$ , то получим:  $\eta_0 = jk_0 \cos \theta$ . После проведённых преобразований очевидно, что при  $\theta = \pi/2$  выражения (3.16) будут равны нулю.

Выпишем теперь окончательные формулы для компонент диаграммы рассения  $\mathbf{F}(\theta, \theta_0, \varphi)$  в верхнем и нижнем полупространствах, и так же убедимся,

что при угле  $\theta = \pi/2$  они будут обращаться в ноль. Физически это будет означать, что при данном значении угла значения рассеянной интенсивности на диаграмме будут уходить в ноль.

Представление для приближенного решения (3.12) в верхнем полупространстве и в подложке вместе с полученными асимптотиками на бесконечности (3.16) сразу позволяет установить следующий вид компонент диаграммы рассеяния:

$$\begin{aligned}
F_\theta^\zeta(\theta, \theta_0, \varphi) &= k^2 \sum_{n=1}^{N^\zeta} \left\{ p_{x,n}^0 \cos \varphi \left( -\varepsilon_\zeta^{\frac{1}{2}} \mu_\zeta^{\frac{1}{2}} \cos \theta \cdot \bar{G}^e - j \sin^2 \theta \cdot k \varepsilon_\zeta \mu_\zeta \bar{g}^e \right) + \right. \\
&+ p_{y,n}^0 \sin \varphi \left( -\varepsilon_\zeta^{\frac{1}{2}} \mu_\zeta^{\frac{1}{2}} \cos \theta \cdot \bar{G}^e - j \sin^2 \theta \cdot k \varepsilon_\zeta \mu_\zeta \bar{g}^e \right) + p_{z,n}^0 \left( \varepsilon_\zeta^{\frac{1}{2}} \mu_\zeta^{\frac{1}{2}} \sin \theta \cdot \bar{G}^h \right) + \\
&\left. + q_{x,n}^0 \sin \varphi \left( \mu_\zeta \bar{G}^h \right) + q_{y,n}^0 \cos \varphi \left( -\mu_\zeta \bar{G}^h \right) \right\} \\
F_\varphi^\zeta(\theta, \theta_0, \varphi) &= k^2 \sum_{n=1}^{N^\zeta} \left\{ p_{x,n}^0 \sin \varphi \left( \varepsilon_\zeta^{\frac{1}{2}} \mu_\zeta^{\frac{1}{2}} \bar{G}^e \right) + p_{y,n}^0 \cos \varphi \left( -\varepsilon_\zeta^{\frac{1}{2}} \mu_\zeta^{\frac{1}{2}} \bar{G}^e \right) + \right. \\
&+ q_{x,n}^0 \cos \varphi \left( \mu_\zeta \cos \theta \cdot \bar{G}^h + \sin^2 \theta \cdot j k \varepsilon_\zeta^{\frac{1}{2}} \mu_\zeta^{\frac{3}{2}} \bar{g}^h \right) + \\
&\left. + q_{y,n}^0 \sin \varphi \left( \mu_\zeta \cos \theta \cdot \bar{G}^h + \sin^2 \theta \cdot j k \varepsilon_\zeta^{\frac{1}{2}} \mu_\zeta^{\frac{3}{2}} \bar{g}^h \right) + q_{z,n}^0 (-\mu_\zeta \sin \theta \cdot \bar{G}^e) \right\}
\end{aligned} \tag{3.17}$$

В полученных выражениях учтены все слагаемые, пропорциональные  $\exp(-jk_0R)/R$  и отброшены все члены порядка  $1/R^2$  и выше, согласно определению диаграммы рассеяния. Вследствие этого компонента диаграммы  $F_R$  тождественно равна нулю и не играет роли в формировании картины распределения интенсивности в дальней зоне.

С помощью непосредственной подстановки  $\theta = \pi/2$  легко убедиться, что в этом случае компоненты диаграммы равны нулю.

*Замечание.* Особо отметим, что угол  $\theta_0$  на рис. 3.25 является углом сферической системы координат  $(R, \theta, \varphi)$ , соответствующей заданной декартовой системе, только при значении  $\varphi = \pi$ . Это обстоятельство важно иметь ввиду во время анализа полученных диаграмм рассеяния, которые строятся в сферической системе координат.

Как ожидалось, из соотношений (3.17) следует, что можно построить искомую диаграмму без существенных вычислительных затрат, поскольку её компоненты являются линейной комбинацией элементарных функций с весовыми множителями, роль которых играют известные амплитуды дискретных

источников по аналогии со случаем однородного пространства. Кроме того, при совпадении материальных характеристик верхнего и нижнего полупространств с помощью непосредственной подстановки можно легко убедиться, что полученные формулы переходят в свои аналоги для однородного пространства (3.3).

Итоговое распределение интенсивности в дальней зоне в зависимости от угла  $\theta$  для соответствующего полупространства  $\zeta = 0,1$  выражается формулой

$$I^\zeta(\theta, \theta_0, \varphi) = |F_\theta^\zeta(\theta, \theta_0, \varphi)|^2 + |F_\varphi^\zeta(\theta, \theta_0, \varphi)|^2. \quad (3.18)$$

В соответствии со сказанным выше в верхнем полупространстве будем использовать обозначение дифференциального сечения рассеяния для величины  $I^0$ :

$$DSC(\theta, \theta_0, \varphi) = I^0(\theta, \theta_0, \varphi).$$

При рассмотрении рассеянного поля в подложке  $\zeta = 1$  аналогичным образом вводится понятие индикатрисы рассеяния.

В завершение данного параграфа остается отметить одно обстоятельство, связанное с построением матрицы системы вида (3.2). Дело в том, что, хотя алгоритм построения матрицы принципиально не отличается от аналогичного алгоритма в свободном пространстве, в задачах с подложкой, как правило, матрицы получаются плохо обусловленными. В связи с этим в качестве дополнительного шага при ее обращении целесообразным представляется использование регуляризации А. Н. Тихонова [124]. Таким образом, наиболее существенными вычислительными осложнениями в задачах с подложкой являются процедура интегрирования в тензоре Грина полей «внешних» источников, и задача псевдообращения матрицы системы, в особенности для случаев, когда источники находятся вблизи границы раздела сред.

### 3.3.3 Обсуждение результатов

В первую очередь необходимо провести апробацию предложенной гибридной схемы МДИ в случае граничной задачи дифракции в среде с подложкой в отсутствие нелокальных эффектов. Проще всего это осуществить на примере прозрачной частицы, анализа её дифференциального сечения рассеяния DSC и проведения апостериорной оценки погрешности (рис. 3.26–3.29).

Рассматривается дифракция плоской волны (3.9) с длиной  $\lambda = 532\text{нм}$  на вытянутом сфериоде из оптического стекла (крон,  $n_i = 1.52$ ), расположенному вблизи кремниевой подложке ( $n_1 = 4.15 - 0.047j$ ). Расстояние до подложки составляет  $0.1\text{нм}$ . Большая ось симметрии сфериода параллельна оси  $x$ . Варьируется радиус его поперечного сечения  $a$  и большая полуось  $b$ . Теоретическая оценка (2.14) при заданной величине  $a$  является априорной оценкой погрешности. Диаграммы  $DSC$  строятся в плоскости падения волны  $\varphi_0 = 0$ .

На рис. 3.26–3.27 приведено сравнение диаграмм рассеяния, полученных по гибридной схеме МДИ, с аналогичными диаграммами, полученными по методу Бобберта, Влигера [125] и по общей схеме МДИ [105] для сферы радиуса

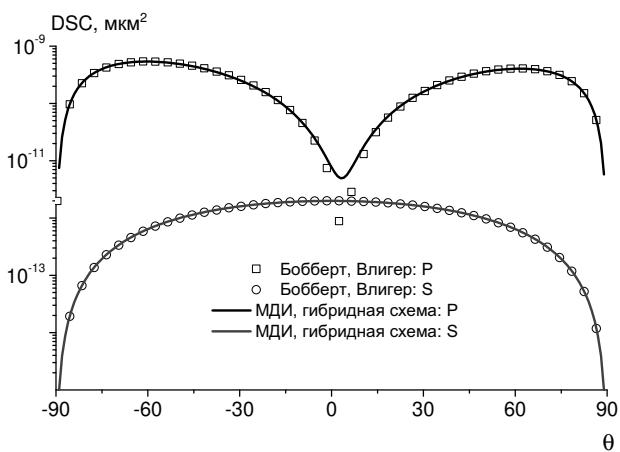


Рисунок 3.26 — Диаграммы рассеяния для сферы радиуса  $a = 7\text{нм}$  на кремниевой подложке, падение под углом  $\theta_0 = 60^\circ$

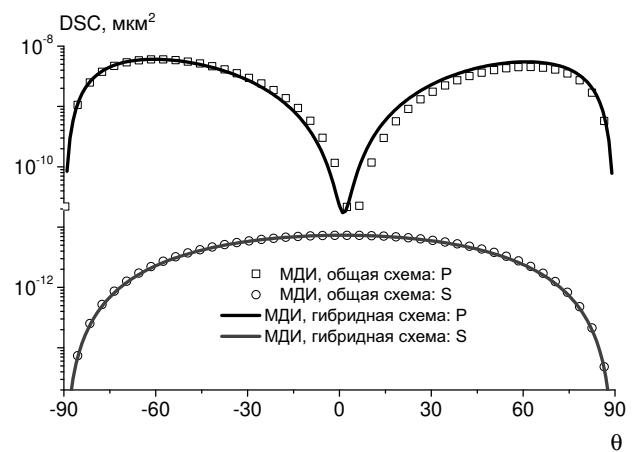


Рисунок 3.27 — Диаграммы рассеяния для сфероида  $a = 7\text{нм}$ ,  $b = 28\text{нм}$  на кремниевой подложке, падение под углом  $\theta_0 = 60^\circ$

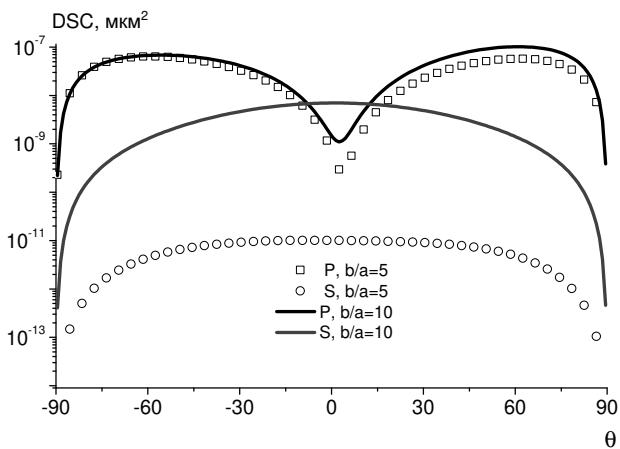


Рисунок 3.28 — Диаграммы рассеяния для сфероидов  $a = 10\text{нм}$  с различным соотношением полуосей на кремниевой подложке, падение под углом  $\theta_0 = 60^\circ$  (гибридная схема МДИ)

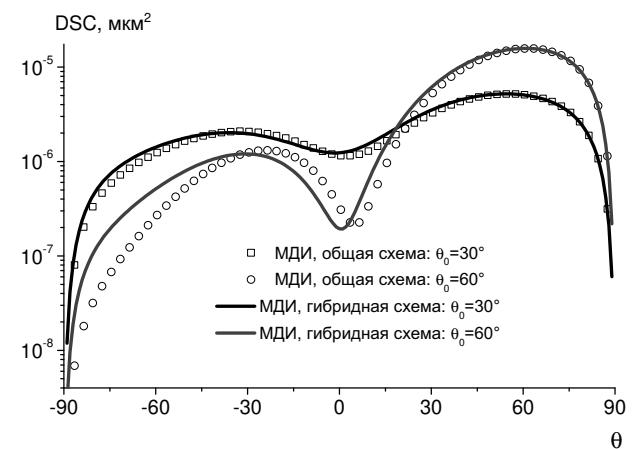


Рисунок 3.29 — Диаграммы рассеяния плоской Р-поляризованной волны для сфероида  $a = 20\text{нм}$ ,  $b = 200\text{нм}$  на кремниевой подложке

$a = 7\text{нм}$  и сфEROида с полуосями  $a = 7\text{нм}$ ,  $b = 28\text{нм}$ . В случае сферы полностью идентичные диаграммы были получены при вращении плоскости падения волны, что позволило дополнительно верифицировать работоспособность гибридной схемы. Априорная оценка погрешности на основе (2.14) при выбранном  $a$  составляет 9%. Апостериорная оценка погрешности не превышает 1% для сферы и 4% для сфEROида. Сравнение наряду с оценкой точности подтверждает работоспособность развитого подхода.

На рис. 3.28 приведены диаграммы рассеяния для двух вытянутых сфEROидов с одинаковыми  $a = 10\text{нм}$  и различными  $b_1 = 50\text{нм}$ ,  $b_2 = 100\text{нм}$ , полученные по гибридной схеме. Априорная оценка погрешности равна 12%. Апостериорная оценка погрешности не превышает 10%.

Кроме того, вычислительный эксперимент показал, что гибридная схема МДИ работоспособна и при относительно больших поперечных размерах рассеивателя (рис. 3.29). В данном случае проведено сравнение построенных диаграмм с общей схемой МДИ для сфEROида с параметрами  $a = 20\text{нм}$ ,  $b = 200\text{нм}$  при различных углах падения плоской Р-поляризованной волны. При этом апостериорная оценка погрешности составляет 13%, тогда как априорная оценка равна 24%. Это обстоятельство хорошо согласуется с теоретическими оценками в п. 2.3.

Перейдём теперь к анализу плазмонных частиц на подложке с учетом эффекта нелокальности с помощью гибридной схемы МДИ. В качестве частицы выберем золотую наносферу некоторого диаметра  $d$ , находящуюся на расстоянии порядка 2нм от прозрачной подложки из оптического стекла с показателем преломления  $n_1 = 1.52$ . Из соответствующего графика, приведенного на рис. 3.30 видно, что в полной мере справедливы результаты, аналогичные полученным в пункте 3.1.5: с ростом диаметра частицы влияние эффектов ЭНЛ сходит на нет, а сами эффекты затрагивают как величину полной интенсивности рассеяния, так и положение резонансной частоты. Кроме того, присутствие прозрачной подложки в среде на указанном расстоянии от частицы не оказывает принципиально существенного влияния на частоту плазмонного резонанса.

Обратимся теперь к спектрам  $\sigma(\lambda)$ , полученным для серебряной наночастицы диаметром  $d = 6\text{нм}$  в присутствии различных подложек при нахождении частицы на расстоянии порядка 0.1нм от них (рис. 3.31). Видно, что прозрачная подложка оказывает весьма слабое влияние на спектр полного сечения

рассеяния. Однако замена подложки на серебряную многократно усиливает интенсивность рассеяния и приводит к возникновению второго ярко выраженного резонансного пика. Это связано с тем, что в среде с подложкой даже в случае сферической геометрии частицы появляется выделенное направление. В обоих приведенных случаях рассматривалось вертикальное падение плоской Р-поляризованной волны на подложку и апостериорная оценка погрешности МДИ не превышала 1%.

Для подтверждения применимости развитого подхода к телам несферической формы так же приведем спектры деформированных сферических наночастиц (сплюснутых серебряных сфEROидов) с коэффициентом сжатия  $r$  и эквиобъемным диаметром  $d = 10\text{нм}$  на прозрачной (крон,  $n_1 = 1.52$ ) и серебряной подложках (рис. 3.32). Хорошую точность полученных результатов обеспечивают значения невязки решения, не превышающие 2%. Сравнение рисунков 3.12 и 3.32 позволяет наглядно продемонстрировать влияние как наличия подложки в среде, так и ее материала на характеристики рассеяния структуры.

В завершение обсуждения отметим, что гибридная схема МДИ допускает аналогичное обобщение на случай задачи с подложкой и для кластеров плазмонных частиц, в том числе для ранее рассмотренных димеров. При этом сохраняются ее отличительные способности проводить расчеты для неосесимметричных групп осесимметричных частиц, и решать задачу сразу для всего

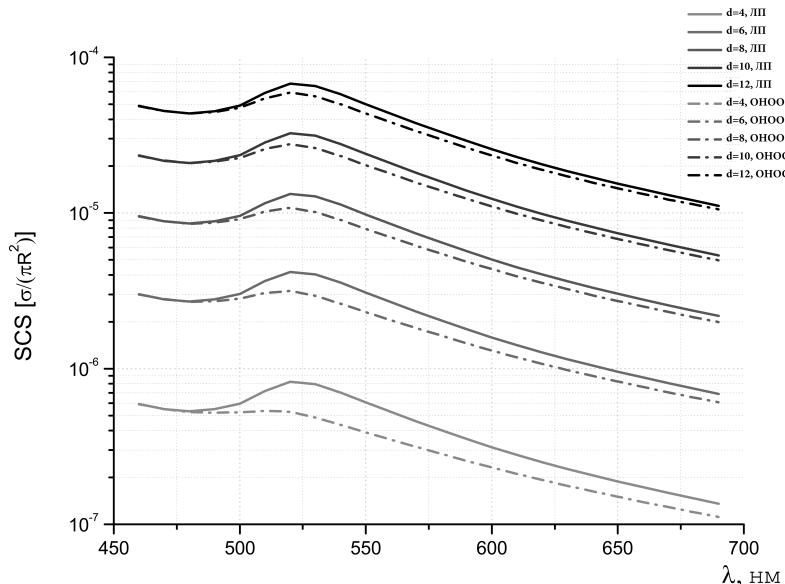


Рисунок 3.30 — Полные сечения рассеяния для золотых сфер диаметром от 4нм до 10нм на подложке (крон,  $n_1 = 1.52$ ). Локальное приближение — сплошные линии; ОНОО-приближение — пунктирные линии.

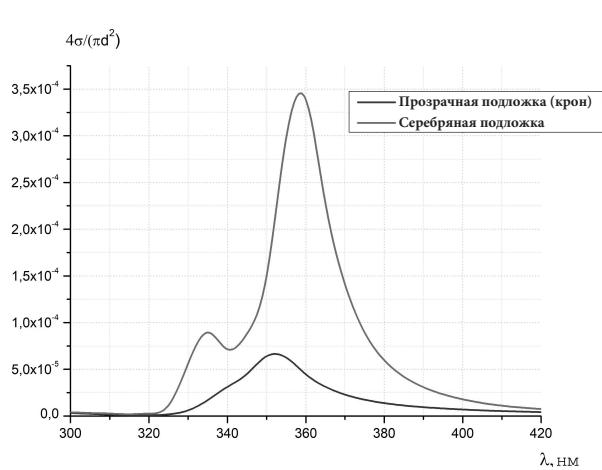


Рисунок 3.31 — Полные сечения рассеяния для серебряной сферы диаметром 6нм на серебряной и на прозрачной (крон,  $n_1 = 1.52$ ) подложках в ОНОО-приближении.

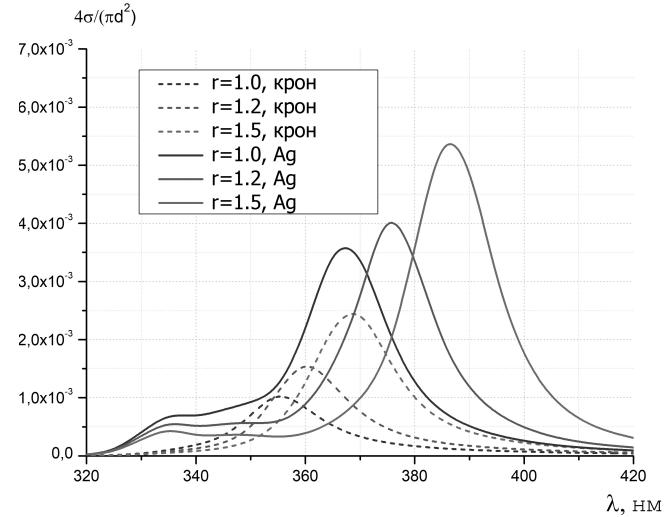


Рисунок 3.32 — Полные сечения рассеяния для сплюснутых серебряных сфероидов диаметром 10нм с соотношением осей  $r$  на различных подложках в ОНОО-приближении.

набора внешних возбуждений — в данном случае, для всевозможных углов падения и плоскостей вращения плоских линейно поляризованных волн. Также представляется возможным и рассмотрение EELS в задачах с подложкой, однако в этом случае помимо необходимости записи явного вида формул отраженного от границы раздела сред поля релятивистского точечного заряда может потребоваться проведение ряда дополнительных исследований.

### 3.4 Выводы

На основе предложенной гибридной схемы метода дискретных источников успешно построены и апробированы математические модели дифракции плоской линейно поляризованной волны и EELS на плазмонных структурах, представляющих собой одиночные частицы либо пары частиц, в однородной диэлектрической среде. Приведено обобщение и верификация модели для дифракции плоских волн на случай задачи с подложкой. Подтверждена возможность учета ЭНЛ в рамках всех представленных моделей, и исследовано влияние ЭНЛ на итоговое решение граничной задачи дифракции — характеристики рассеяния для различных наноструктур. Верификация результатов осуществлялась с помощью сравнения с существующими аналитическими и

численными подходами, а также через апостериорный контроль точности вычислений. Кроме того, значительное влияние ЭНЛ и важность его учета продемонстрированы с помощью сравнения предсказаний теории на основе классической задачи для уравнений Максвелла и теории на основе ОНОО с последними экспериментальными измерениями. В общем случае предложенный численный подход позволяет исследовать осесимметричные частицы и кластеры частиц несферической формы в слоистых средах. В связи с этим полученные результаты могут быть использованы в качестве основы для построения новых вычислительных схем для анализа актуальных в приложениях наноструктур, к числу которых относятся неосесимметричные группы частиц (димеры и тримеры) в средах с подложкой.

Материалы главы опубликованы в работах [18; 39; 115; 126—130].

## Заключение

Основные результаты диссертации заключаются в следующем.

1. Предложена модификация метода дискретных источников (МДИ), получившая название гибридной схемы, предполагающая использование более узкого класса полных и замкнутых систем линейно независимых функций с простой структурой носителя и позволяющая проводить анализ рассеивающих свойств трехмерныхnanoструктур несферической формы, находящихся в однородной диэлектрической среде, либо расположенных на подложке. Проведено математическое обоснование данной схемы и предложен способ учета эффектов пространственной дисперсии среды в ее рамках с помощью гидродинамической теории и теории обобщенного нелокального оптического отклика.
2. Построены трехмерные математические модели дифракции электромагнитных полей как на одиночных плазмонных наночастицах, так и на димерах с учетом ЭНЛ. В качестве поля внешнего возбуждения в ряде задач используются плоские линейно поляризованные волны, распространяющиеся под произвольным углом. Впервые на основе МДИ предложена математическая модель дифракции электронного пучка на препятствии и проведено сравнение полученных с ее помощью расчетных спектров характеристических потерь энергии электронов с экспериментальными данными.
3. Разработаны и реализованы вычислительные алгоритмы для решения соответствующих граничных задач дифракции с учетом особенностей численного моделирования в задачах с эффектом нелокальности. Создан программный комплекс в среде MATLAB с программными вставками на языке FORTRAN, позволяющий проводить анализ различных характеристик плазмонных nanoструктур в широком диапазоне параметров с учетом эффектов пространственной дисперсии плазмонной среды и возможностью апостериорного проведения контроля точности расчетов, в том числе в режиме параллельных вычислений.
4. На основе компьютерной реализации гибридной схемы МДИ проведен анализ оптических свойств наноразмерных структур, представляющих собой как одиночные плазмонные частицы, так и димеры. В

результате моделирования установлено существенное влияние ЭНЛ, выражющееся в снижении амплитуды плазмонного резонанса на порядок величины, и в сдвиге резонансной частоты в коротковолновую область на величину от 2 до 15нм, что является критическим для использования наноразмерных частиц в современных технологиях.

В заключение я выражаю глубокую благодарность и искреннюю признательность своему научному руководителю Алексею Георгиевичу Свешникову и ведущему научному сотруднику лаборатории вычислительной электродинамики факультета вычислительной математики и кибернетики МГУ Юрию Александровичу Еремину за переданный бесценный опыт, за интересные поставленные задачи и за внимательное отношение к моей работе.

Отдельно хотелось бы поблагодарить главу научно-исследовательской группы в институте материаловедения им. Лейбница университета Бремена Томаса Вридта за новые идеи, плодотворные обсуждения и ценные рекомендации при работе над диссертацией. Хотелось бы поблагодарить и сотрудников кафедры математики, и в особенности ее преподавательский состав, без огромного влияния которого трудно было бы себе представить успешное выполнение настоящей работы.

И конечно же, я выражаю огромную благодарность всей моей семье, родным и близким за их поддержку, веру, и понимание.

## Список литературы

1. Климов В. В. Наноплазмоника. — М.: ФИЗМАТЛИТ, 2010. — 480 с.
2. Maier S. A. Plasmonics: Fundamentals and Applications. — Springer US, 2007. — DOI: [10.1007/0-387-37825-1](https://doi.org/10.1007/0-387-37825-1).
3. Pelton M., Bryant G. W. Introduction to Metal-Nanoparticle Plasmonics. — Wiley, 2013.
4. Gold Dimer Nanoantenna with Slanted Gap for Tunable LSPR and Improved SERS / S. Kessentini [и др.] // The Journal of Physical Chemistry C. — 2014. — Т. 118, № 6. — С. 3209—3219. — DOI: [10.1021/jp409844y](https://doi.org/10.1021/jp409844y).
5. Modified field enhancement and extinction by plasmonic nanowire dimers due to nonlocal response / G. Toscano [и др.] // Optics Express. — 2012. — Т. 20, № 4. — С. 4176. — DOI: [10.1364/oe.20.004176](https://doi.org/10.1364/oe.20.004176).
6. Plasmonic Properties of Halloysite Nanotubes with Immobilized Silver Nanoparticles for Applications in Surface-Enhanced Raman Scattering / A. V. Kornilova [и др.] // Physica status solidi (a). — 2019. — Т. 216, № 14. — С. 1800886. — DOI: [10.1002/pssa.201800886](https://doi.org/10.1002/pssa.201800886).
7. de Abajo F. J. G. Nonlocal Effects in the Plasmons of Strongly Interacting Nanoparticles, Dimers, and Waveguides // The Journal of Physical Chemistry C. — 2008. — Т. 112, № 46. — С. 17983—17987. — DOI: [10.1021/jp807345h](https://doi.org/10.1021/jp807345h).
8. Plasmonic quantum size effects in silver nanoparticles are dominated by interfaces and local environments / A. Campos [и др.] // Nature Physics. — 2018. — Т. 15, № 3. — С. 275—280. — DOI: [10.1038/s41567-018-0345-z](https://doi.org/10.1038/s41567-018-0345-z).
9. Ruppin R. Optical properties of small metal spheres // Physical Review B. — 1975. — Т. 11, № 8. — С. 2871—2876. — DOI: [10.1103/physrevb.11.2871](https://doi.org/10.1103/physrevb.11.2871).
10. Unusual resonances in nanoplasmonic structures due to nonlocal response / S. Raza [и др.] // Physical Review B. — 2011. — Т. 84, № 12. — DOI: [10.1103/physrevb.84.121412](https://doi.org/10.1103/physrevb.84.121412).

11. Mortensen N. A. Nonlocal formalism for nanoplasmonics: Phenomenological and semi-classical considerations // Photonics and Nanostructures - Fundamentals and Applications. — 2013. — Т. 11, № 4. — С. 303–309. — DOI: [10.1016/j.photonics.2013.06.002](https://doi.org/10.1016/j.photonics.2013.06.002).
12. Ginzburg P., Zayats A. V. Localized Surface Plasmon Resonances in Spatially Dispersive Nano-Objects: Phenomenological Treatise // ACS Nano. — 2013. — Т. 7, № 5. — С. 4334–4342. — DOI: [10.1021/nn400842m](https://doi.org/10.1021/nn400842m).
13. Moreau A., Ciraci C., Smith D. R. Impact of nonlocal response on metallocdielectric multilayers and optical patch antennas // Physical Review B. — 2013. — Т. 87, № 4. — DOI: [10.1103/physrevb.87.045401](https://doi.org/10.1103/physrevb.87.045401).
14. Broadening of Plasmonic Resonance Due to Electron Collisions with Nanoparticle Boundary: a Quantum Mechanical Consideration / A. V. Uskov [и др.] // Plasmonics. — 2014. — 1 февр. — Т. 9, № 1. — С. 185. — DOI: [10.1007/s11468-013-9611-1](https://doi.org/10.1007/s11468-013-9611-1).
15. A generalized non-local optical response theory for plasmonic nanostructures / N. A. Mortensen [и др.] // Nature Communications. — 2014. — Т. 5, № 1. — DOI: [10.1038/ncomms4809](https://doi.org/10.1038/ncomms4809).
16. Bridging quantum and classical plasmonics with a quantum-corrected model / R. Esteban [и др.] // Nature Communications. — 2012. — Т. 3, № 1. — DOI: [10.1038/ncomms1806](https://doi.org/10.1038/ncomms1806).
17. Еремин Ю. А., Свешников А. Г. Анализ влияния эффекта нелокальности на рассеивающие свойства плазмонногоnanoцилиндра методом дискретных источников // Вестник Московского университета. Серия 3: Физика, астрономия. — 2016. — № 5.
18. Еремин Ю. А., Лопушенко И. В. Учет эффекта нелокальности при расщеплении света на плазмонных наночастицах в гибридной схеме метода дискретных источников // Вестник Московского университета. Серия 15: Вычислительная математика и кибернетика. — 2017. — № 4. — С. 14–21.
19. David C., de Abajo F. J. G. Spatial Nonlocality in the Optical Response of Metal Nanoparticles // The Journal of Physical Chemistry C. — 2011. — Т. 115, № 40. — С. 19470–19475. — DOI: [10.1021/jp204261u](https://doi.org/10.1021/jp204261u).

20. Nonlocal Effects in the Nanofocusing Performance of Plasmonic Tips / A. Wiener [и др.] // Nano Letters. — 2012. — Т. 12, № 6. — С. 3308–3314. — DOI: [10.1021/nl301478n](https://doi.org/10.1021/nl301478n).
21. Nonlocal optical response in metallic nanostructures / S. Raza [и др.] // Journal of Physics: Condensed Matter. — 2015. — Т. 27, № 18. — С. 183204. — DOI: [10.1088/0953-8984/27/18/183204](https://doi.org/10.1088/0953-8984/27/18/183204).
22. A classical treatment of optical tunneling in plasmonic gaps: extending the quantum corrected model to practical situations / R. Esteban [и др.] // Faraday Discussions. — 2015. — Т. 178. — С. 151–183. — DOI: [10.1039/c4fd00196f](https://doi.org/10.1039/c4fd00196f).
23. Yurkin M., Hoekstra A. The discrete dipole approximation: An overview and recent developments // Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer. — 2007. — Т. 106, № 1–3. — С. 558–589. — DOI: [10.1016/j.jqsrt.2007.01.034](https://doi.org/10.1016/j.jqsrt.2007.01.034).
24. Comparison of Numerical Methods for the Analysis of Plasmonic Structures / J. Smajic [и др.] // Journal of Computational and Theoretical Nanoscience. — 2009. — Т. 6, № 3. — С. 763–774. — DOI: [10.1166/jctn.2009.1107](https://doi.org/10.1166/jctn.2009.1107).
25. Gallinet B., Butet J., Martin O. J. F. Numerical methods for nanophotonics: standard problems and future challenges // Laser & Photonics Reviews. — 2015. — Т. 9, № 6. — С. 577–603. — DOI: [10.1002/lpor.201500122](https://doi.org/10.1002/lpor.201500122).
26. Kahnert M. Numerical solutions of the macroscopic Maxwell equations for scattering by non-spherical particles: A tutorial review // Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer. — 2016. — Т. 178. — С. 22–37. — DOI: [10.1016/j.jqsrt.2015.10.029](https://doi.org/10.1016/j.jqsrt.2015.10.029).
27. Ильинский А., Краевцов В. В., Свешников А. Г. Математические модели электродинамики. — М.: Высш. шк., 1991. — 224 с.
28. Allen Taflove S. C. H. Computational Electrodynamics: The Finite-Difference Time-Domain Method. — Artech House Inc., 2005. — 1006 с.
29. Jin J. Finite Element Electromagnetic. — John Wiley & Sons, 2014. — 878 с.
30. A DGTD method for the numerical modeling of the interaction of light with nanometer scale metallic structures taking into account non-local dispersion effects / N. Schmitt [и др.] // Journal of Computational Physics. — 2016. — Т. 316. — С. 396–415. — DOI: [10.1016/j.jcp.2016.04.020](https://doi.org/10.1016/j.jcp.2016.04.020).

31. Самохин А. Б., Самохина А. С., Шестопалов Ю. В. Методы дискретизации объемных сингулярных интегральных уравнений электромагнетизма // Дифференциальные уравнения. — 2018. — Т. 54, № 9. — С. 1251–1261. — DOI: [10.1134/s0374064118090108](https://doi.org/10.1134/s0374064118090108).
32. Галишиникова Т. Н., Ильинский А. С. Метод интегральных уравнений в задачах дифракции волн. — М.: МАКС Пресс, 2013. — 248 с.
33. Еремин Ю. А., Свешников А. Г. Метод дискретных источников в задачах электромагнитной дифракции. — Издательство Московского Университета, 1992. — 182 с.
34. Generalized Multipole Techniques for Electromagnetic and Light Scattering / под ред. Т. Wriedt. — Elsevier, 1999. — DOI: [10.1016/b978-0-444-50282-7.x5012-x](https://doi.org/10.1016/b978-0-444-50282-7.x5012-x).
35. Doicu A., Eremin Y., Wriedt T. Acoustic and Electromagnetic Scattering Analysis Using Discrete Sources. — Elsevier, 2000. — DOI: [10.1016/b978-0-12-219740-6.x5000-x](https://doi.org/10.1016/b978-0-12-219740-6.x5000-x).
36. Khlebtsov N. G. T-matrix method in plasmonics: An overview // Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer. — 2013. — Т. 123. — С. 184–217. — DOI: [10.1016/j.jqsrt.2012.12.027](https://doi.org/10.1016/j.jqsrt.2012.12.027).
37. Quantum effects and nonlocality in strongly coupled plasmonic nanowire dimers / Т. В. Терепик [и др.] // Optics Express. — 2013. — Т. 21, № 22. — С. 27306. — DOI: [10.1364/oe.21.027306](https://doi.org/10.1364/oe.21.027306).
38. The Generalized Multipole Technique for Light Scattering / под ред. Т. Wriedt, Y. Eremin. — Springer International Publishing, 2018. — DOI: [10.1007/978-3-319-74890-0](https://doi.org/10.1007/978-3-319-74890-0).
39. Еремин Ю. А., Лопушенко И. В. Гибридная схема метода дискретных источников для анализа граничных задач нанооптики // Вестник Московского университета. Серия 15: Вычислительная математика и кибернетика. — 2016. — № 1. — С. 3–10.
40. Jackson J. D. Classical Electrodynamics, 3rd Edition. — John Wiley & Sons, 1998. — С. 832.
41. Денисов В. И. Введение в электродинамику материальных сред: учебное пособие. — М. : Издательство Московского Университета, 1989. — С. 168.

42. Electromagnetic surface modes / под ред. A. D. Boardman. — John Wiley & Sons, 1982. — 776 c.
43. Lindhard J. On the properties of a gas of charged particle. — København : I kommission hos Munksgaard, 1954. — (Dan. Mat. Fys. Medd.8).
44. Boardman A. D., Paranjape B. V., Nakamura Y. O. Surface Plasmon-Polaritons in a Spatially Dispersive Inhomogeneous Medium // physica status solidi (b). — 1976. — T. 75, № 1. — C. 347—359. — DOI: [10.1002/pssb.2220750138](https://doi.org/10.1002/pssb.2220750138).
45. Johnson P. B., Christy R. W. Optical Constants of the Noble Metals // Physical Review B. — 1972. — T. 6, № 12. — C. 4370—4379. — DOI: [10.1103/physrevb.6.4370](https://doi.org/10.1103/physrevb.6.4370).
46. База данных показателей преломления. — URL: <https://refractiveindex.info/>.
47. Drude P. Zur Elektronentheorie der Metalle // Annalen der Physik. — 1900. — T. 306, № 3. — C. 566—613. — DOI: [10.1002/andp.19003060312](https://doi.org/10.1002/andp.19003060312).
48. Sommerfeld A., Bethe H. Elektronentheorie der Metalle // Aufbau Der Zusammenhängenden Materie. — Springer Berlin Heidelberg, 1933. — C. 333—622. — DOI: [10.1007/978-3-642-91116-3\\_3](https://doi.org/10.1007/978-3-642-91116-3_3).
49. Ашкрофт H., Мермин H. Физика твердого тела. Т. 1, 2. — М. : Мир, 1979.
50. Киттель Ч. Введение в физику твердого тела. — М. : Наука, 1978.
51. Novotny L., Hecht B. Principles of Nano-Optics. — Cambridge University Press, 2006. — DOI: [10.1017/cbo9780511813535](https://doi.org/10.1017/cbo9780511813535).
52. Bloch F. Bremsvermgen von Atomen mit mehreren Elektronen // Zeitschrift fr Physik. — 1933. — T. 81, № 5/6. — C. 363—376. — DOI: [10.1007/bf01344553](https://doi.org/10.1007/bf01344553).
53. Ying S. C. Hydrodynamic response of inhomogeneous metallic systems // Il Nuovo Cimento B Series 11. — 1974. — T. 23, № 1. — C. 270—281. — DOI: [10.1007/bf02737509](https://doi.org/10.1007/bf02737509).
54. Eguiluz A., Quinn J. J. Hydrodynamic model for surface plasmons in metals and degenerate semiconductors // Physical Review B. — 1976. — T. 14, № 4. — C. 1347—1361. — DOI: [10.1103/physrevb.14.1347](https://doi.org/10.1103/physrevb.14.1347).

55. Electron-Energy Loss Study of Nonlocal Effects in Connected Plasmonic Nanoprisms / A. Wiener [и др.] // ACS Nano. — 2013. — Т. 7, № 7. — С. 6287—6296. — DOI: [10.1021/nn402323t](https://doi.org/10.1021/nn402323t).
56. Nonlocal Response of Metallic Nanospheres Probed by Light, Electrons, and Atoms / T. Christensen [и др.] // ACS Nano. — 2014. — Т. 8, № 2. — С. 1745—1758. — DOI: [10.1021/nn406153k](https://doi.org/10.1021/nn406153k).
57. Resonance shifts and spill-out effects in self-consistent hydrodynamic nanoplasmatics / G. Toscano [и др.] // Nature Communications. — 2015. — Т. 6, № 1. — DOI: [10.1038/ncomms8132](https://doi.org/10.1038/ncomms8132).
58. Theory of surface plasmons and surface-plasmon polaritons / J. M. Pitarke [и др.] // Reports on Progress in Physics. — 2006. — Т. 70, № 1. — С. 1—87. — DOI: [10.1088/0034-4885/70/1/r01](https://doi.org/10.1088/0034-4885/70/1/r01).
59. Datsyuk V. V., Pavlyniuk O. R. Properties of Longitudinal Electromagnetic Oscillations in Metals and Their Excitation at Planar and Spherical Surfaces // Nanoscale Research Letters. — 2017. — Т. 12, № 1. — DOI: [10.1186/s11671-017-2230-6](https://doi.org/10.1186/s11671-017-2230-6).
60. McMahon J. M., Gray S. K., Schatz G. C. Calculating nonlocal optical properties of structures with arbitrary shape // Physical Review B. — 2010. — Т. 82, № 3. — DOI: [10.1103/physrevb.82.035423](https://doi.org/10.1103/physrevb.82.035423).
61. Melnyk A. R., Harrison M. J. Theory of Optical Excitation of Plasmons in Metals // Physical Review B. — 1970. — Т. 2, № 4. — С. 835—850. — DOI: [10.1103/physrevb.2.835](https://doi.org/10.1103/physrevb.2.835).
62. Nonlocal response in plasmonic waveguiding with extreme light confinement / G. Toscano [и др.] // Nanophotonics. — 2013. — Т. 2, № 3. — DOI: [10.1515/nanoph-2013-0014](https://doi.org/10.1515/nanoph-2013-0014).
63. Sauter F. Der Einfluss von Plasmawellen auf das Reflexionsvermögen von Metallen (I) // Zeitschrift für Physik. — 1967. — Т. 203, № 5. — С. 488—494. — DOI: [10.1007/bf01322063](https://doi.org/10.1007/bf01322063).
64. Forstmann F., Stenschke H. Electrodynamics at Metal Boundaries with Inclusion of Plasma Waves // Physical Review Letters. — 1977. — Т. 38, № 23. — С. 1365—1368. — DOI: [10.1103/physrevlett.38.1365](https://doi.org/10.1103/physrevlett.38.1365).

65. *Boardman A., Ruppin R.* The boundary conditions between spatially dispersive media // Surface Science. — 1981. — Т. 112, № 1/2. — С. 153—167. — DOI: [10.1016/0039-6028\(81\)90339-3](https://doi.org/10.1016/0039-6028(81)90339-3).
66. *Ginzburg P., Zayats A. V.* Localized Surface Plasmon Resonances in Spatially Dispersive Nano-Objects: Phenomenological Treatise // ACS Nano. — 2013. — Т. 7, № 5. — С. 4334—4342. — DOI: [10.1021/nn400842m](https://doi.org/10.1021/nn400842m).
67. *Ландау Л. Д., Либшиц Е. М.* Электродинамика сплошных сред. — М. : Наука, 1982.
68. *Hanson G. W.* Drift-Diffusion: A Model for Teaching Spatial-Dispersion Concepts and the Importance of Screening in Nanoscale Structures // IEEE Antennas and Propagation Magazine. — 2010. — Т. 52, № 5. — С. 198—207. — DOI: [10.1109/map.2010.5687538](https://doi.org/10.1109/map.2010.5687538).
69. *Wubs M., Mortensen N. A.* Nonlocal Response in Plasmonic Nanostructures //. — Springer, 2017. — DOI: [10.1007/978-3-319-45820-5\\_12](https://doi.org/10.1007/978-3-319-45820-5_12).
70. Transformation Optics and Subwavelength Control of Light / J. B. Pendry [и др.] // Science. — 2012. — Т. 337, № 6094. — С. 549—552. — DOI: [10.1126/science.1220600](https://doi.org/10.1126/science.1220600).
71. *Дмитриев В. И., Захаров Е. В.* Метод интегральных уравнений в вычислительной электродинамике. — М. : МАКС Пресс, 2008.
72. A numerical combination of extended boundary condition method and invariant imbedding method applied to light scattering by large spheroids and cylinders / L. Bi [и др.] // Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer. — 2013. — Т. 123. — С. 17—22. — DOI: [10.1016/j.jqsrt.2012.11.033](https://doi.org/10.1016/j.jqsrt.2012.11.033).
73. *Zuloaga J., Prodan E., Nordlander P.* Quantum Description of the Plasmon Resonances of a Nanoparticle Dimer // Nano Letters. — 2009. — Т. 9, № 2. — С. 887—891. — DOI: [10.1021/nl803811g](https://doi.org/10.1021/nl803811g).
74. *Monreal R. C., Antosiewicz T. J., Apell S. P.* Competition between surface screening and size quantization for surface plasmons in nanoparticles // New Journal of Physics. — 2013. — Т. 15, № 8. — С. 083044. — DOI: [10.1088/1367-2630/15/8/083044](https://doi.org/10.1088/1367-2630/15/8/083044).

75. *Gouesbet G.* Generalized lorenz-mie theory and applications // Particle & Particle Systems Characterization. — 1994. — T. 11, № 1. — C. 22—34. — DOI: [10.1002/ppsc.19940110105](https://doi.org/10.1002/ppsc.19940110105).
76. *Stratton J. A.* Electromagnetic theory. — New York : McGraw-Hill Book Company, Inc., 1941.
77. *Kerker M., Wang D.-S., Giles C. L.* Electromagnetic scattering by magnetic spheres // Journal of the Optical Society of America. — 1983. — T. 73, № 6. — C. 765. — DOI: [10.1364/josa.73.000765](https://doi.org/10.1364/josa.73.000765).
78. *Aden A. L., Kerker M.* Scattering of Electromagnetic Waves from Two Concentric Spheres // Journal of Applied Physics. — 1951. — T. 22, № 10. — C. 1242—1246. — DOI: [10.1063/1.1699834](https://doi.org/10.1063/1.1699834).
79. *Kaiser T., Schweiger G.* Stable algorithm for the computation of Mie coefficients for scattered and transmitted fields of a coated sphere // Computers in Physics. — 1993. — T. 7, № 6. — C. 682. — DOI: [10.1063/1.168475](https://doi.org/10.1063/1.168475).
80. *Kai L., Massoli P.* Scattering of electromagnetic-plane waves by radially inhomogeneous spheres: a finely stratified sphere model // Applied Optics. — 1994. — T. 33, № 3. — C. 501. — DOI: [10.1364/ao.33.000501](https://doi.org/10.1364/ao.33.000501).
81. *Bohren C. F.* Light scattering by an optically active sphere // Chemical Physics Letters. — 1974. — T. 29, № 3. — C. 458—462. — DOI: [10.1016/0009-2614\(74\)85144-4](https://doi.org/10.1016/0009-2614(74)85144-4).
82. *Martin R. J.* Mie Scattering Formulae for Non-spherical Particles // Journal of Modern Optics. — 1993. — T. 40, № 12. — C. 2467—2494. — DOI: [10.1080/09500349314552471](https://doi.org/10.1080/09500349314552471).
83. *Фарафонов В. Г., Винокуров А. А.* Рассеяние света многослойными осесимметричными частицами: решение проблемы методом разделения переменных // Оптика и спектроскопия. — 2008. — Т. 105, № 2. — С. 318—331.
84. *Ruppin R.* Optical Properties of a Plasma Sphere // Physical Review Letters. — 1973. — T. 31, № 24. — C. 1434—1437. — DOI: [10.1103/physrevlett.31.1434](https://doi.org/10.1103/physrevlett.31.1434).

85. *Apell P., Ljungbert.* A General Non-Local Theory for the Electromagnetic Response of a Small Metal Particle // *Physica Scripta.* — 1982. — Т. 26, № 2. — С. 113.
86. *Apell P., Ljungbert Å.* Red shift of surface plasmons in small metal particles // *Solid State Communications.* — 1982. — Т. 44, № 9. — С. 1367—1369. — DOI: [10.1016/0038-1098\(82\)90895-x](https://doi.org/10.1016/0038-1098(82)90895-x).
87. *Dasgupta B. B., Fuchs R.* Polarizability of a small sphere including nonlocal effects // *Physical Review B.* — 1981. — Т. 24, № 2. — С. 554—561. — DOI: [10.1103/physrevb.24.554](https://doi.org/10.1103/physrevb.24.554).
88. *Fuchs R., Claro F.* Multipolar response of small metallic spheres: Nonlocal theory // *Physical Review B.* — 1987. — Т. 35, № 8. — С. 3722—3727. — DOI: [10.1103/physrevb.35.3722](https://doi.org/10.1103/physrevb.35.3722).
89. Blueshift of the surface plasmon resonance in silver nanoparticles: substrate effects / S. Raza [и др.] // *Optics Express.* — 2013. — Т. 21, № 22. — С. 27344. — DOI: [10.1364/oe.21.027344](https://doi.org/10.1364/oe.21.027344).
90. *Abajo F. J. G. de.* Relativistic energy loss and induced photon emission in the interaction of a dielectric sphere with an external electron beam // *Physical Review B.* — 1999. — Т. 59, № 4. — С. 3095—3107. — DOI: [10.1103/physrevb.59.3095](https://doi.org/10.1103/physrevb.59.3095).
91. *Abajo F. J. G. de.* Electron energy loss and cathodoluminescence in spheres. — URL: <http://nanophotonics.es/widgets>.
92. Comprehensive thematic T-matrix reference database: A 2015–2017 update / M. I. Mishchenko [и др.] // *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer.* — 2017. — Т. 202. — С. 240—246. — DOI: [10.1016/j.jqsrt.2017.08.007](https://doi.org/10.1016/j.jqsrt.2017.08.007).
93. *Loke V. L., Mengüç M. P., Nieminen T. A.* Discrete-dipole approximation with surface interaction: Computational toolbox for MATLAB // *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer.* — 2011. — Т. 112, № 11. — С. 1711—1725. — DOI: [10.1016/j.jqsrt.2011.03.012](https://doi.org/10.1016/j.jqsrt.2011.03.012).
94. Light Scattering by Nonspherical Particles / под ред. M. Mishchenko, J. Hovenier, L. Travis. — 1999.

95. *Kern A. M., Martin O. J. F.* Excitation and Reemission of Molecules near Realistic Plasmonic Nanostructures // *Nano Letters*. — 2011. — Т. 11, № 2. — С. 482—487. — DOI: [10.1021/nl1032588](https://doi.org/10.1021/nl1032588).
96. *Егоров А. А., Ставцев А. В.* Численное исследование характеристик лазерного излучения, рассеянного в интегрально-оптическом волноводе с трехмерными неоднородностями // Журнал радиоэлектроники. — 2012. — № 2. — URL: <http://jre.cplire.ru/koi/febl2/13/text.html>.
97. *Alegret J., Johansson P., Käll M.* Green's tensor calculations of plasmon resonances of single holes and hole pairs in thin gold films // *New Journal of Physics*. — 2008. — Т. 10, № 10. — С. 105004. — DOI: [10.1088/1367-2630/10/10/105004](https://doi.org/10.1088/1367-2630/10/10/105004).
98. *Hiremath K. R., Zschiedrich L., Schmidt F.* Numerical solution of nonlocal hydrodynamic Drude model for arbitrary shaped nano-plasmonic structures using Nédélec finite elements // *Journal of Computational Physics*. — 2012. — Т. 231, № 17. — С. 5890—5896. — DOI: [10.1016/j.jcp.2012.05.013](https://doi.org/10.1016/j.jcp.2012.05.013).
99. *Еремин Ю. А., Свешников А. Г.* Математическая модель учета эффекта нелокальности плазмонных структур на основе метода дискретных источников // Журнал вычислительной математики и математической физики. — 2018. — № 4. — С. 586—594. — DOI: [10.7868/s0044466918040099](https://doi.org/10.7868/s0044466918040099).
100. *Eremin Y., Doicu A., Wriedt T.* Discrete sources method for modeling the nonlocal optical response of a nonspherical particle dimer // *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*. — 2018. — Т. 217. — С. 35—44. — DOI: [10.1016/j.jqsrt.2018.05.026](https://doi.org/10.1016/j.jqsrt.2018.05.026).
101. *Ekardt W.* Dynamical Polarizability of Small Metal Particles: Self-Consistent Spherical Jellium Background Model // *Physical Review Letters*. — 1984. — Т. 52, № 21. — С. 1925—1928. — DOI: [10.1103/physrevlett.52.1925](https://doi.org/10.1103/physrevlett.52.1925).
102. *Ekardt W.* Size-dependent photoabsorption and photoemission of small metal particles // *Physical Review B*. — 1985. — Т. 31, № 10. — С. 6360—6370. — DOI: [10.1103/physrevb.31.6360](https://doi.org/10.1103/physrevb.31.6360).
103. *Еремин Ю. А., Свешников А. Г.* Математические модели задач нанооптики и биофотоники на основе метода дискретных источников // Журнал вычислительной математики и математической физики. — 2007. — Т. 47, № 2. — С. 266—284.

104. Ильинский А. С., Свешников А. Г. Четыре лекции по численным методам в теории дифракции. — Ленинград: Изд-во ЛГУ им. А.А.Жданова, 1972. — 92 с.
105. Еремин Ю. А., Свешников А. Г. Метод дискретных источников в задачах рассеяния электромагнитных волн // Успехи современной радиоэлектроники. — 2003. — № 10. — С. 3—40.
106. Analysis of plasmonic resonances of two paired noble metal spheroids via the discrete sources method / Y. Eremin [и др.] // Journal of Modern Optics. — 2013. — Т. 60, № 7. — С. 529—537. — DOI: [10.1080/09500340.2013.794393](https://doi.org/10.1080/09500340.2013.794393).
107. Борн М., Вольф Э. Основы оптики. — М. : Наука, 1970.
108. Свешников А. Г., Могилевский И. Е. Математические задачи теории дифракции. — М. : Физический факультет МГУ, 2010.
109. Колтон Д., Кресс Р. Методы интегральных уравнений в теории рассеяния. — М. : Мир, 1987.
110. Plasmonic Nanolenses: Electrostatic Self-Assembly of Hierarchical Nanoparticle Trimers and Their Response to Optical and Electron Beam Stimuli / J. A. Lloyd [и др.] // ACS Nano. — 2017. — Т. 11, № 2. — С. 1604—1612. — DOI: [10.1021/acsnano.6b07336](https://doi.org/10.1021/acsnano.6b07336).
111. Application of Generalized Mie Theory to EELS Calculations as a Tool for Optimization of Plasmonic Structures / S. Thomas [и др.] // Plasmonics. — 2015. — Т. 11, № 3. — С. 865—874. — DOI: [10.1007/s11468-015-0120-2](https://doi.org/10.1007/s11468-015-0120-2).
112. Numerical simulation of Electron Energy Loss Spectroscopy using a Generalized Multipole Technique / L. Kiewidt [и др.] // Ultramicroscopy. — 2013. — Т. 133. — С. 101—108. — DOI: [10.1016/j.ultramic.2013.07.001](https://doi.org/10.1016/j.ultramic.2013.07.001).
113. Фейнман Р., Лейтон Р., Сэндс М. Электродинамика. — М. : Мир, 1966.
114. Abajo F. J. G. de. Optical excitations in electron microscopy // Reviews of Modern Physics. — 2010. — Т. 82, № 1. — С. 209—275. — DOI: [10.1103/revmodphys.82.209](https://doi.org/10.1103/revmodphys.82.209).
115. Лопущенко И. В. Моделирование возбуждения плазмонных частиц электронным пучком (EELS) с помощью метода дискретных источников // Учен. зап. физ. фак-та Моск. ун-та. — 2018. — № 6.

116. Reichel L., Rodriguez G., Seatzu S. Error estimates for large-scale ill-posed problems // Numerical Algorithms. — 2008. — Т. 51, № 3. — С. 341—361. — DOI: [10.1007/s11075-008-9244-1](https://doi.org/10.1007/s11075-008-9244-1).
117. Shampine L. Vectorized adaptive quadrature in MATLAB // Journal of Computational and Applied Mathematics. — 2008. — Т. 211, № 2. — С. 131—140. — DOI: [10.1016/j.cam.2006.11.021](https://doi.org/10.1016/j.cam.2006.11.021).
118. Tuning Localized Surface Plasmon Resonance Wavelengths of Silver Nanoparticles by Mechanical Deformation / F. S. Ameer [и др.] // The Journal of Physical Chemistry C. — 2016. — Т. 120, № 37. — С. 20886—20895. — DOI: [10.1021/acs.jpcc.6b02169](https://doi.org/10.1021/acs.jpcc.6b02169).
119. Gold nanoparticle ensembles as heaters and actuators: melting and collective plasmon resonances / A. O. Govorov [и др.] // Nanoscale Research Letters. — 2006. — Т. 1, № 1. — С. 84—90. — DOI: [10.1007/s11671-006-9015-7](https://doi.org/10.1007/s11671-006-9015-7).
120. Zhang W., Li Q., Qiu M. A plasmon ruler based on nanoscale photothermal effect // Optics Express. — 2013. — Т. 21, № 1. — С. 172. — DOI: [10.1364/oe.21.000172](https://doi.org/10.1364/oe.21.000172).
121. Еремин Ю. А., Свешников А. Г. Использование фиктивных частиц при анализе рассеивающих свойств малозаметных дефектов подложки // Вестник Московского университета. Серия 3: Физика, астрономия. — 2013. — № 6. — С. 8—13.
122. Mori M., Sugihara M. The double-exponential transformation in numerical analysis // Journal of Computational and Applied Mathematics. — 2001. — Т. 127, № 1/2. — С. 287—296. — DOI: [10.1016/s0377-0427\(00\)00501-x](https://doi.org/10.1016/s0377-0427(00)00501-x).
123. Свешников А. Г., Тихонов А. Н. Теория функций комплексной переменной. — М. : ФИЗМАТЛИТ, 2010.
124. Морозов В. А. Регулярные методы решения некорректно поставленных задач. — М.: Наука. Гл. ред. физ.-мат. лит., 1987. — 240 с.
125. Bobbert P., Vlieger J. Light scattering by a sphere on a substrate // Physica A: Statistical Mechanics and its Applications. — 1986. — Т. 137, № 1/2. — С. 209—242. — DOI: [10.1016/0378-4371\(86\)90072-5](https://doi.org/10.1016/0378-4371(86)90072-5).

126. *Лопушенко И. В.* Гибридная схема метода дискретных источников в задачах дифракции электромагнитных волн на плоскихnanoструктурах в присутствии слоистой среды // Учен. зап. физ. фак-та Моск. ун-та. — 2016. — № 6. — URL: <http://uzmu.phys.msu.ru/abstract/2016/6/1661105/>.
127. *Lopushenko I. V.* Incorporation of non-local optical response into the discrete sources method to solve 3D scattering problems of nanoplasmonics // 2017 Progress In Electromagnetics Research Symposium - Spring (PIERS). — IEEE, 05.2017. — DOI: [10.1109/piers.2017.8262096](https://doi.org/10.1109/piers.2017.8262096).
128. *Lopushenko I. V.* Numerical simulation of nonlocal optical response in light scattering by nanoparticle on the substrate // Plasmonics: Design, Materials, Fabrication, Characterization, and Applications XV / под ред. Т. Tanaka, D. P. Tsai. — SPIE, 08.2017. — DOI: [10.1117/12.2273280](https://doi.org/10.1117/12.2273280).
129. *Еремин Ю. А., Лопушенко И. В.* Численно-аналитический подход к анализу рассеивающих свойств несферических плазмонных частиц на подложке с учетом эффекта нелокальности // Акустооптические и радиолокационные методы измерений и обработки информации: Материалы 10-й Международной научно-технической конференции. — Российское НТОРЭС им. А. С. Попова Москва, 2017. — С. 13—17.
130. *Lopushenko I.* Numerical simulation of electron energy loss spectroscopy accounting for nonlocal effect in plasmonic nanoparticles // Journal of Physics: Conference Series. — 2018. — Сент. — Т. 1092. — С. 012079. — DOI: [10.1088/1742-6596/1092/1/012079](https://doi.org/10.1088/1742-6596/1092/1/012079).
131. *Васильев Е. Н.* Возбуждение тел вращения. — М.: Радио и связь, 1987.
132. *Купрадзе В. Д.* О приближенном решении задач математической физики // УМН. — 1967. — Т. 22, вып. 134, № 2. — С. 59—107.
133. *Wriedt T.* Using the T-Matrix Method for Light Scattering Computations by Non-axisymmetric Particles: Superellipsoids and Realistically Shaped Particles // Particle & Particle Systems Characterization. — 2002. — Т. 19, № 4. — С. 256—268. — DOI: [10.1002/1521-4117\(200208\)19:4<256::aid-ppsc256>3.0.co;2-8](https://doi.org/10.1002/1521-4117(200208)19:4<256::aid-ppsc256>3.0.co;2-8).

## Наиболее значимые публикации автора по теме диссертации

1. Еремин Ю. А., Лопушенко И. В. Гибридная схема метода дискретных источников для анализа граничных задач нанооптики // Вестник Московского университета. Серия 15: Вычислительная математика и кибернетика. — 2016. — № 1. — С. 3—10.
2. Еремин Ю. А., Лопушенко И. В. Учет эффекта нелокальности при рассеянии света на плазмонных наночастицах в гибридной схеме метода дискретных источников // Вестник Московского университета. Серия 15: Вычислительная математика и кибернетика. — 2017. — № 4. — С. 14—21.
3. Лопушенко И. В. Моделирование возбуждения плазмонных частиц электронным пучком (EELS) с помощью метода дискретных источников // Учен. зап. физ. фак-та Моск. ун-та. — 2018. — № 6.
4. Lopushenko I. V. Numerical simulation of nonlocal optical response in light scattering by nanoparticle on the substrate // Plasmonics: Design, Materials, Fabrication, Characterization, and Applications XV / под ред. Т. Tanaka, D. P. Tsai. — SPIE, 08.2017. — DOI: [10.1117/12.2273280](https://doi.org/10.1117/12.2273280).
5. Lopushenko I. V. Incorporation of non-local optical response into the discrete sources method to solve 3D scattering problems of nanoplasmatics // 2017 Progress In Electromagnetics Research Symposium - Spring (PIERS). — IEEE, 05.2017. — DOI: [10.1109/piers.2017.8262096](https://doi.org/10.1109/piers.2017.8262096).
6. Lopushenko I. V. Numerical simulation of electron energy loss spectroscopy accounting for nonlocal effect in plasmonic nanoparticles // Journal of Physics: Conference Series. — 2018. — Сент. — Т. 1092. — С. 012079. — DOI: [10.1088/1742-6596/1092/1/012079](https://doi.org/10.1088/1742-6596/1092/1/012079).

## Публикации автора по теме диссертации

**В изданиях из списка ВАК РФ**

1. *Лопушенко И. В.* Моделирование возбуждения плазмонных частиц электронным пучком (EELS) с помощью метода дискретных источников // Учен. зап. физ. фак-та Моск. ун-та. — 2018. — № 6.
2. *Еремин Ю. А., Лопушенко И. В.* Учет эффекта нелокальности при рассеянии света на плазмонных наночастицах в гибридной схеме метода дискретных источников // Вестник Московского университета. Серия 15: Вычислительная математика и кибернетика. — 2017. — № 4. — С. 14—21.
3. *Еремин Ю. А., Лопушенко И. В.* Гибридная схема метода дискретных источников для анализа граничных задач нанооптики // Вестник Московского университета. Серия 15: Вычислительная математика и кибернетика. — 2016. — № 1. — С. 3—10.

### **В сборниках трудов конференций**

4. *Lopushenko I.* Numerical simulation of electron energy loss spectroscopy accounting for nonlocal effect in plasmonic nanoparticles // Journal of Physics: Conference Series. — 2018. — Сент. — Т. 1092. — С. 012079. — DOI: [10.1088/1742-6596/1092/1/012079](https://doi.org/10.1088/1742-6596/1092/1/012079).
5. *Lopushenko I. V.* Incorporation of non-local optical response into the discrete sources method to solve 3D scattering problems of nanoplasmonics // 2017 Progress In Electromagnetics Research Symposium - Spring (PIERS). — IEEE, 05.2017. — DOI: [10.1109/piers.2017.8262096](https://doi.org/10.1109/piers.2017.8262096).
6. *Lopushenko I. V.* Numerical simulation of nonlocal optical response in light scattering by nanoparticle on the substrate // Plasmonics: Design, Materials, Fabrication, Characterization, and Applications XV / под ред. Т. Tanaka, D. P. Tsai. — SPIE, 08.2017. — DOI: [10.1117/12.2273280](https://doi.org/10.1117/12.2273280).
7. *Еремин Ю. А., Лопушенко И. В.* Численно-аналитический подход к анализу рассеивающих свойств несферических плазмонных частиц на подложке с учетом эффекта нелокальности // Акустооптические и радиолокационные методы измерений и обработки информации: Материалы 10-й Международной научно-технической конференции. — Российское НТОРЭС им. А. С. Попова Москва, 2017. — С. 13—17.

8. Лопушенко И. В. Исследование влияния подложки на рассеивающие свойства проницаемых частиц // Труды Российского научно-технического общества радиотехники, электроники и связи имени А.С.Попова. Выпуск 6: 6-я Международная конференция “Акустооптические и радиолокационные методы измерений и обработки информации” (ARMIMP-2013). — 2013. — С. 79—83.
9. Лопушенко И. В. Гибридная схема метода дискретных источников для анализа граничных задач нанооптики // Международный научный семинар «АКТУАЛЬНЫЕ ПРОБЛЕМЫ МАТЕМАТИЧЕСКОЙ ФИЗИКИ». Сборник тезисов докладов. — Москва, МГУ им. М.В. Ломоносова, Физический факультет, 2014. — С. 49—53.
10. Лопушенко И. В. Гибридная схема метода дискретных источников в задачах рассеяния световых волн частицами на подложке // Материалы Международного молодежного научного форума «Ломоносов-2014» (7-11 апреля). — 2014. — С. 94—95.
11. Лопушенко И. В. Гибридная схема метода дискретных источников для анализа граничных задач нанооптики и плазмоники // Материалы Международного молодежного научного форума «ЛОМОНОСОВ-2015». ISBN 978-5-317-04946-1. — 2015.
12. Лопушенко И. В. Реализация гибридной схемы метода дискретных источников для анализа рассеяния э/м волн плоскимиnanoструктурами на подложке // XXIII Международная конференция студентов, аспирантов и молодых ученых по фундаментальным наукам «Ломоносов-2016». Сборник тезисов. Т. 1. — Физический факультет МГУ Москва, 2016.
13. Лопушенко И. В. Гибридная схема метода дискретных источников в задачах дифракции электромагнитных волн на плоских nanoструктурах в присутствии слоистой среды // Сборник трудов XV Всероссийской школы-семинара «Волновые явления в неоднородных средах» имени А.П. Сухорукова ( «Волны-2016»). — Москва, 2016. — (Секция 12. Математическое моделирование в радиофизике и оптике).
14. Lopushenko I. V. Substrate influence on the scattering properties of metal nanoparticles accounting for the Non-local Effect // «Science and Progress - 2016» Book of Proceedings. —, 2016.

15. *Lopushenko I. V.* Analysis of Non-Local Optical Response by the Discrete Sources Method // Proceedings of the Bremen Workshop. — Bremen, 2017. — P. 5.
16. *Лопушенко И. В.* Учет эффекта нелокальности при рассеянии света на плазмонных наночастицах в гибридной схеме метода дискретных источников // Сборник трудов XVI Всероссийской школы-семинара «Физика и применение микроволн» имени А.П. Сухорукова «Волны-2017»). — физический факультет МГУ имени М.В.Ломоносова Москва Москва, 2017. — (Секция 12.Математическое моделирование в радиофизике и оптике).
17. *Lopushenko I. V.* Excitation of plasmonic nanoparticles with electron beam (EELS) accounting for nonlocal effect // Light Scattering by Particles, Bremen Workshop 2018. Vol. 5. — epubli Berlin, 2018. — (ScattPort Series).
18. *Лопушенко И. В.* Моделирование возбуждения плазмонных частиц электронным пучком (EELS) с помощью метода дискретных источников // Сборник трудов Всероссийской школы-семинара "Волновые явления в неоднородных средах" имени профессора А.П. Сухорукова ("Волны-2018"). — 2018.
19. *Lopushenko I. V.* Simulation of EELS response of a plasmonic nanoparticle by the Discrete Sources Method // Book of Abstracts of IX International Conference for Professionals & Young Scientists «Low Temperature Physics» (ICPYS-LTP-2018). — B. Verkin Institute for Low Temperature Physics, Engineering. 2018. — C. 94.
20. *Lopushenko I. V.* Numerical investigation of nonlocal response influence on EELS spectra of plasmonic nanoparticles // VIII International Conference on Optoelectronic Information Technologies "Photonics-ODS 2018"Abstracts. — 2018. — C. 253.
21. *Lopushenko I.* Analysis of plasmonic nanodimer excited by electron beam (EELS) accounting for the presence of longitudinal waves with the Discrete Sources Method // CONFERENCE ABSTRACTS International Student Conference “Science and Progress-2018”. — 2018. — C. 276.
22. *Lopushenko I.* Analysis of plasmonic nanodimer excited by electron beam (EELS) accounting for Nonlocal Effect with the Discrete Sources Method // Proceedings of the Bremen Workshop on Light Scattering 2019. — Leibniz

Institute for Materials Engineering IWT. Bremen, Germany, 2019. — C. 38—42.

23. Еремин Ю. А., Лопушенко И. В. Анализ влияния квантового эффекта нелокальности в плазмонике с помощью метода дискретных источников // Сборник тезисов докладов научной конференции «Ломоносовские чтения», секция физики. — М.: Физический факультет МГУ, 2019. — С. 136—140.
24. Lopushenko I. V. Numerical simulation of EELS spectra of plasmonic nanodimers accounting for spatial dispersion effects with the Discrete Sources Method // Book of Abstracts of X International Conference for Professionals & Young Scientists «Low Temperature Physics» (ICPYS–LTP–2019). — B. Verkin Institute for Low Temperature Physics, Engineering. 2019. — С. 84.

## **В прочих изданиях**

25. Лопушенко И. В. Гибридная схема метода дискретных источников в задачах дифракции электромагнитных волн на плоскихnanoструктурах в присутствии слоистой среды // Учен. зап. физ. фак-та Моск. ун-та. — 2016. — № 6. — URL: <http://uzmu.phys.msu.ru/abstract/2016/6/1661105/>.

## Приложение А

### А.1 Обоснование полноты и замкнутости системы вертикальных дипольных источников

**Теорема 2** Пусть одиночная частица  $D_i$  – связная осесимметрична область с гладкой поверхностью  $\partial D_i \in C^{(2,\alpha)}$ , внешняя область –  $D_e = \mathbb{R}^2 \setminus \overline{D}_i$ . Обозначим ось симметрии тела как  $O_z$ . Пусть множество точек  $\{z_n\}_{n=1}^\infty$ , лежащих на оси  $z$ , имеет внутри тела хотя бы одну точку сгущения. Тогда система (2.25) полна в  $L_2^\xi(\partial D_i)$  – пространстве функций, касательных к образующей поверхности и независящих от  $\varphi$ .

□ Предположим, что существует функция  $\mathbf{v} \in L_2^\xi(\partial D_i) : \|\mathbf{v}\| \neq 0$  такая, что

$$\int_{\partial D_i} \mathbf{E}_n(P) \cdot \mathbf{v}(P) d\sigma_P = 0, \forall n. \quad (\text{A.1})$$

В силу того, что  $\partial D_i$  осесимметрична, а  $\Psi$  и  $\mathbf{v}$  не зависят от  $\varphi$ , то (A.1) можно переписать, как

$$\int_{\partial D_i} \text{rot}_{P\text{rot}} \{\Psi(P, z_n) \mathbf{e}_z\} \cdot \mathbf{v}(P) d\sigma_P = 0 \quad (\text{A.2})$$

для  $\forall n, \mathbf{e}_i$  – декартов базис. Введем в рассмотрение функцию  $V(z) = \int_{\partial D_i} \text{rot}_{P\text{rot}} \{\Psi(P, z_n) \mathbf{e}_i\} \cdot \mathbf{v}(P) d\sigma_P$ . Поскольку  $\Psi(M, z)$  – аналитическая по  $z$  на отрезке оси внутри тела  $(a, b)$ , то из (A.1) и свойств  $\{z_n\}_{n=1}^\infty$  следует, что  $V(z) = 0, z \in (a, b)$ . Продолжим аналитически  $V(z)$  с оси в полуплоскость. В [34] показано, что аналитическим продолжением  $h_0^{(2)}(k_e R_{Mz_n})$  из оси в полуплоскость является функция кольцевого тока [131]

$$S_0(\xi, \zeta) = \int_0^{2\pi} \Psi(M, P) d\varphi, \quad \Psi(M, P) = h_0^{(2)}(k_e R_{MP}).$$

Покажем, что подобное аналитическое продолжение единственно. Предположим противное. Пусть существует функция  $W(\xi), \xi = (\rho, z)$  отличная от нуля,

такая, что  $W(z) = 0$ ,  $z \in (a,b)$ . Как известно, любое регулярное решение уравнения Гельмгольца можно представить в виде разложения по сферическим функциям Бесселя. Тогда

$$W(\xi) = \sum_{n=0}^{\infty} \alpha_n j_n(k_e r) P_n(\cos \theta), \quad r^2 = \rho^2 + z^2.$$

Выберем начало координат на отрезке  $(a,b)$ , устремляя  $\rho \rightarrow 0$ ,  $\theta = 0$ , получаем  $W(z) = \sum_{n=0}^{\infty} \alpha_n j_n(k_e z) = 0$ . Устремляя  $z \rightarrow +0$  последовательно получим  $\alpha_0 = 0, \dots; \alpha_n = 0, \dots$ . Утверждение доказано. Таким образом имеем

$$\int_{\partial D_i} \text{rot}_P \text{rot}_P \left\{ \int_0^{2\pi} \psi(M, P) d\varphi \mathbf{e}_i \right\} \cdot \mathbf{v}(P) d\sigma_P = 0.$$

Используя преобразования векторного анализа [34], получим

$$\int_{\partial D_i} \text{rot}_P \text{rot}_P \left\{ \int_0^{2\pi} \psi(M, P) d\varphi \mathbf{e}_i \right\} \cdot \mathbf{v}(P) d\sigma_P = \mathbf{e}_i \text{rot}_M \text{rot}_M \int_{\partial D_i} \left\{ \int_0^{2\pi} \psi(M, P) d\varphi \right\} \cdot \mathbf{v}(P) d\sigma_P$$

Следовательно,

$$\text{rot}_M \text{rot}_M \int_{\partial D_i} \left\{ \int_0^{2\pi} \psi(M, P) d\varphi \right\} \cdot \mathbf{v}(P) d\sigma_P = 0, \quad M \in D_i.$$

Далее действуем по схеме [34; 35]:

1. Введем в рассмотрение потенциал  $\mathbf{A}(M) = \int_{\partial D_i} \left\{ \int_0^{2\pi} \psi(M, P) d\varphi \right\} \cdot \mathbf{v}(P) d\sigma_P$  и поля  $\mathbf{E}(M) = \frac{j}{k_e \epsilon_e} \text{rot} \text{rot} \mathbf{A}(M)$ ,  $\mathbf{H}(M) = \frac{j}{k_e} \text{rot} \mathbf{A}(M)$ .

2. Так как  $\mathbf{A}(M)$  представляет аналитическую функцию во внутренней области, то  $\mathbf{H}(M) = 0$  в  $D_i$ . Устремляя точку к поверхности  $\partial D_i$   $\lim_{h \rightarrow +0} (\mathbf{n}_P \times \mathbf{H}(P - h\mathbf{n}_P)) = 0$ ,  $P \in \partial D_i$  и используя свойства потенциала двойного слоя получим почти всюду на образующей  $\partial D_i$  уравнение Фредгольма 2-го рода с гладким ядром [71] и аналитической правой частью. Используя свойства резольвенты этого уравнения [132], установим, что  $\mathbf{v} \in C_{\tau}^{(1,\alpha)}$ .

3. Следовательно,  $\lim_{h \rightarrow +0} (\mathbf{n}_P \times \mathbf{E}(P - h\mathbf{n}_P)) = \lim_{h \rightarrow +0} (\mathbf{n}_P \times \mathbf{E}(P + h\mathbf{n}_P)) = 0$ ,  $P \in \partial D_i$  [109].

4. Таким образом во внешней области  $D_e$  получаем граничную задачу для поля  $\mathbf{E}$

$$[\mathbf{E}(P) \times \mathbf{n}_P] = 0, P \in \partial D_i,$$

$$\Delta \mathbf{E}(M) + k_e^2 \mathbf{E}(M) = 0, M \in D_e,$$

Условия излучения на  $\infty$ .

Следовательно,  $\mathbf{E}(M) = 0 \Rightarrow \mathbf{H}(M) = 0, M \in D_e$ .

5. Беря скачок тангенциальных компонент поля  $\mathbf{H}$  на поверхности  $\partial D_i$ , получим  $[\mathbf{n} \times \mathbf{H}]_+ - [\mathbf{n} \times \mathbf{H}]_- = \mathbf{v}(P) = 0, P \in \partial D_i$ . Это означает, что полнота системы вертикальных электрических диполей (2.25) доказана.  $\triangle$

## A.2 Краткое описание программного комплекса

Программный комплекс представляет собой единый набор инструментов, преимущественно реализованных в среде MATLAB и предназначенных для решения всех задач, представленных в настоящей диссертации. Логически комплекс разделен на две составные части: интерфейс для обработки входных данных, и на реализацию гибридной схемы метода дискретных источников.

К первой части относится большинство MATLAB классов, функций и скриптов, позволяющих корректно генерировать либо импортировать сетки точек коллокаций рассеивателей сложной формы в формате *obj* [133], интерполировать показатели преломления из табличных значений [46], вычислять значения полей внешнего возбуждения, работать с геометрией задачи, и так далее. Существенно используются преимущества объектно-ориентированного подхода, позволяющего построить общий интерфейс для решения широкого класса задач. Выходными данными интерфейса являются массивы данных, необходимых для применения МДИ.

Логика второй части программы преимущественно реализована в двух отдельных классах *DSMinit.m* и *DSMsolver.m* и подразумевает генерацию систем дискретных источников согласно заданным входным параметрам, составление матриц для переопределенных систем уравнений, реализацию алгоритмов по ее псевдорешению, включая регуляризацию А. Н. Тихонова [116],

вычислению невязки решения и характеристик рассеяния. Основной упор сделан на эффективность решения, в том числе с использованием встроенных в MATLAB возможностей векторизации кода и работы с параллельными вычислениями на многоядерных центральных процессорах. Кроме того, с целью повышения производительности в задачах с подложкой для вычисления интегралов Зоммерфельда используется внешняя *texh*-библиотека, реализованная на языке FORTRAN и скомпилированная как для 32/64-х разрядных редакций Windows (компилятор Intel Fortran), так и для 64-х разрядных версий Linux (компилятор GNU Fortran) [122].

Файлы входных данных для удобства дальнейшей работы с переменными представляют собой статические классы MATLAB. В данный момент комплекс позволяет ставить в очередь на расчет до 15 различных задач в зависимости от большого количества параметров, среди которых размеры и форма рассеивателя, материалы рассеивателя и подложки, зазор между частицами димера, различные соотношения между числом точек коллокаций и дискретных источников для проверки вычислительной сходимости, и так далее. Для каждой задачи при этом предусмотрено решение набора спектральных проблем в указанном пользователем диапазоне длин волн, значения которых не должны выходить за пределы, определенные в подключаемых таблицах для показателей преломления.

Одним из преимуществ реализации программного комплекса является тот факт, что на основе существующего интерфейса без изменений в структуре программы могут быть дополнительно реализованы и другие вычислительные схемы на основе МДИ либо иных подходов из семейства численно-аналитических подходов GMT, в которых используются другие полные и замкнутые системы линейно независимых функций. Это обстоятельство достигается за счет того факта, что функции для вычисления полей и координат используемой системы ДИ полностью отделены как друг от друга, так и от вычислительной логики программы, и легко могут быть заменены на любые другие. Таким образом, в рамках комплекса может быть значительно расширен класс решаемых задач за счет выбора наиболее удобной GMT-схемы.

Работоспособность комплекса гарантируется в версиях среды не ниже R2016b как в Windows, так и в Linux системах. Также возможны доработка ПО для совместимости со свободной средой Octave и реализация всего вычислительного блока гибридной схемы МДИ на низкоуровневых языках

программирования с привлечением возможностей программирования на графических процессорах, что позволит добиться большего роста производительности в задачах дифракции на трехмерных структурах.