

- 1 Контактные данные автора, ответственного за связь с редакцией
- 2 Иванов Иван Иванович
- 3 Институт прикладной физики им. А. В. Гапонова-Грехова РАН, 603950, г. Нижний
- 4 Новгород, БОКС-120, ул. Ульянова, 46
- 5 контактный телефон +7 000 111-11-11
- 6 e-mail: author@example.ru

7 УДК 533.9...12 + 533.9.01 см. <https://teacode.com/online/udc/>

8 **НАЗВАНИЕ СТАТЬИ НА РУССКОМ ЯЗЫКЕ**

9 И. И. Иванов¹, С. С. Сафина^{1,2}, П. П. Петров³

10 ¹ Нижегородский госуниверситет им. Н. И. Лобачевского, г. Нижний Новгород;

11

12 Здесь печатается аннотация статьи на русском языке.

13 **TITLE IN ENGLISH**

14 I. I. Ivanov, S. S. Safina, and P. P. Petrov

15 The abstract in English should be translated from the abstract in Russian.

16

17 Здесь желательно привести перевод часто используемых в статье специальных тер-
18 минов на английский язык:

19 захваченные частицы — trapped particles

20 ВВЕДЕНИЕ

21 Металлические наноструктуры привлекают к себе большое внимание благодаря своим
22 уникальным характеристикам, связанным с возможностью возбуждения в них плаз-
23 монных резонансов на частоте падающего на наночастицу электромагнитного излуче-
24 ния. Основной интерес к таким плазмонным наноструктурам обусловлен их уникальной
25 способностью локализовать электромагнитные поля на нанометровых масштабах, су-
26 щественно меньших дифракционного предела, что позволяет контролировать свойства
27 света в размерах, намного меньших его длины волны [1, 2]. Благодаря плазмонным ре-
28 зонансам в наноструктурах происходит существенное увеличение локальной плотности
29 энергии поля, что приводит к возможности проявления в них различного рода нелиней-
30 ных эффектов, включающих многофотонную люминесценцию [3–6], четырехволновое
31 смешивание [7, 8, 10, 11], и генерацию гармоник оптического излучения [12–14]. В част-
32 ности, явление генерации второй гармоники в наноструктурах, возможность возник-
33 новения которого в ограниченных металлических объектах была впервые обнаружена
34 экспериментально и объяснена теоретически в работах [15, 16], является в настоящее
35 время основой для широкого круга практических применений, включающего диагно-
36 стику наноструктур [17] и оптических сред [18]. Важным фактором, благодаря которо-
37 му наноструктуры и основанные на них метаматериалы могут служить эффективным
38 инструментом для генерации второй гармоники, является возможность резонансного
39 усиления поля не только основной гармоники оптического излучения, но и его второй
40 гармоники при совпадении удвоенной частоты с собственной частотой другой плазмон-
41 ной модой наноструктуры.

42 К настоящему моменту явление двойного плазмонного резонанса исследовалось фак-
43 тически только для наноструктур обеспечивающих одновременное возбуждение двух
44 различных поверхностных плазмонов наночастицы на основной и удвоенной гармони-

ках падающего излучения. Однако в общем случае в наноструктуре, помимо поверх-
ностных плазмонов могут существовать и объемные плазмоны [19–22] – моды коллек-
тивных электронных колебаний, представляющие собой стоячие плазменные (Ленгмю-
ровские) волны и возникающие из-за пространственной дисперсии (нелокальности по-
ляризуемости плазмы). Объемные плазмоны, как известно, могут сильно проявлять
себя в случае, когда источник возбуждения коллективных электронных колебаний на-
ходится внутри наночастицы и характеризуется неоднородным распределением поля,
что, например, имеет место в задачах спектроскопии характеристических потерь энер-
гии электронами (англ. Electron Energy Loss Spectroscopy) при рассеянии пучков за-
ряженных частиц наноструктурами [21, 23]. Подобная ситуация может возникнуть и в
задачах генерации второй гармоники, когда обусловленные нелинейностью токи второй
гармоники, возбуждаемые при резонансе поверхностного плазмона на основной частоте
колебаний, могут возбуждать объемные плазмонные колебания в наночастице. Данный
эффект может иметь место, например, в случае наноструктуры простейшей формы, ме-
таллической сферической наночастицы, однако к настоящему моменту двойные плаз-
монные резонансы типа поверхностный плазмон – объемный плазмон фактически не
были исследованы и являются предметом исследования данной работы.

В данной работе на основании гидродинамической модели [24–26] исследуются нели-
нейные эффекты, обусловленные возникновением резонансов объемных плазмонов на
удвоенной частоте в условиях, когда частота основной гармоники наночастицы также
испытывает резонанс и совпадает с частотой дипольного поверхностного плазмона на-
ночастицы (хорошо известный резонанс Ми). Работа организована следующим образом:
вначале на основе уравнений гидродинамики с использованием метода последователь-
ных приближений сформулированы краевые задачи, описывающие в квазистатическом
приближении пространственное распределение поля и плотности заряда на основной и

70 удвоенной гармониках внешнего поля в малой металлической наночастице произволь-
71 ной формы. Далее описано решение этих задач применительно к случаю сферической
72 наночастицы, и исследованы условия отвечающие условию возбуждения в наночасти-
73 цах двойных резонансов типа поверхностный плазмон – объемный плазмон. После при-
74 водятся результаты расчетов, иллюстрирующие влияние исследуемых резонансов на
75 частотные зависимости сечения поглощения сферических наночастиц и сформулирова-
76 ны основные результаты работы.

77 1 ПОСТАНОВКА ЗАДАЧИ

78 Рассмотрим металлическую наночастицу произвольной формы, находящуюся в задан-
79 ном внешнем поле падающей электромагнитной волны на частоте ω ($\mathbf{E}_0 \exp(i\omega t)$), и
80 находящуюся в среде с диэлектрической проницаемостью ϵ_d . Как известно, достаточно
81 подробное описание нелинейной динамики носителей в квазиклассическом приближе-
82 нии может быть получено с помощью набора уравнений гидродинамики (уравнение
83 непрерывности и уравнение Эйлера), описывающих электронную плазму как сжимае-
84 мую заряженную жидкость [25, 27–29]. При построении физической модели двойных
85 резонансов исследуемого типа будем считать выполненными ряд приближений, а имен-
86 но будем предполагать, что (I) размеры наночастицы малы по сравнению с длиной
87 падающей волны и допустимо квазистатическое приближение для описания поля внут-
88 ри и вблизи поверхности наночастицы (II) вклад в магнитную составляющую силы
89 Лоренца, действующую на электроны в металле пренебрежимо мал, (III) электроны
90 находятся внутри бесконечно глубокой потенциальной ямы, то есть будем пренебрегать
91 эффектом размывания профиля электронной плотности близ границы металла (так
92 называемый spill-out effect) [30], возникающим при учете давления электронов и (IV)
93 положительный заряд ионного остова с равномерной плотностью распределен по объ-

ему наночастицы (предполагается, что в отсутствие внешнего поля электроны, как и ионы, распределены равномерно по объему частицы с плотностью N_0 , а диэлектрическая проницаемость ионного остова материала частицы равна ε_∞). Описанные выше условия (вместе с условиями применимости гидродинамического подхода) приводят к следующим ограничениям на параметры задачи:

$$\frac{v_F}{\omega_p} \ll L \ll \frac{2\pi c}{2\omega\sqrt{\varepsilon_{d,\infty}}}, \quad v \ll c, \quad (1)$$

где $v_F = \hbar(3\pi^2 N_0)^{\frac{1}{3}}/m$ — скорость Ферми, c — скорость света, e и m — заряд и масса электрона, \hbar — постоянная Планка, L — характерный размер частицы, ω — частота внешнего поля, $\omega_p^2 = 4\pi e^2 N_0/m$ — плазменная частота. Принимаемые здесь приближения несколько сужают область применимости рассматриваемой модели, однако поскольку ранее двойные плазмонные резонансы обсуждаемого здесь типа фактически не исследовались, такое упрощение модели представляется оправданным первым шагом на пути построения более точной модели.

С учетом указанных предположений о характеристиках наночастицы и внешнего поля, нелинейная динамика коллективных электронных колебаний в наночастице подчиняется системе уравнений:

$$\frac{\partial N}{\partial t} + \text{div}(N\mathbf{v}) = 0, \quad (2)$$

$$\frac{\partial \mathbf{v}}{\partial t} + \nu \mathbf{v} + (\mathbf{v} \nabla) \mathbf{v} = \frac{e}{m} \mathbf{E} - \frac{1}{mN} \nabla p, \quad (3)$$

$$\text{div} \mathbf{E} = \frac{4\pi}{\varepsilon_\infty} e(N - N_0), \quad (4)$$

где введены следующие параметры электронов: \mathbf{v} — скорость, N — возмущённая концентрация, ν — эффективная частота соударений, $\mathbf{f} = N\mathbf{v}$ имеет смысл потока, p — давление электронов. Конкретный вид выражения для последней из перечисленных величин, фактически отвечающей за нелокальность поляризационного отклика плазмы, являлся предметом множества дискуссий и в настоящее время существует широкий спектр

116 моделей, описывающих эту величину применительно к различным условиям. В рамках
 117 рассматриваемой здесь простой модели мы используем следующее феноменологическое
 118 уравнение состояния, отвечающее исследуемому здесь случаю быстрого адиабатическо-
 119 го процесса и позволяющее получить из описанных выше уравнений (2), (3) известный
 120 закон дисперсии как для поверхностных, так и для объемных плазмонов:

$$p = p_0(N/N_0)^\gamma, \quad p_0 = mv_F^2 N_0/5, \quad \gamma = 3. \quad (5)$$

121 Следуя обычной процедуре метода возмущений, применяемого в случае слабой нели-
 122 нейности, представим в уравнениях неизвестные плотность электронов, скорость и на-
 123 пряженность поля в виде суммы гармонических слагаемых, изменяющихся на частоте,
 124 кратной частоте внешнего поля. Далее сопоставляя в получившихся уравнениях вели-
 125 чины одинакового порядка малости, получаем следующие уравнения, определяющие
 126 комплексные амплитуды плотности заряда и потенциала поля для основной ($\omega_1 = \omega$,
 127 $n = 1$) и удвоенной ($\omega_2 = 2\omega$, $n = 2$) гармоник.

$$\Delta\rho_{1,2} + k_{p1,2}^2 \rho_{1,2} = -\frac{1}{4\pi r_0^2} \Delta\varphi_{1,2}^{ex} + \left(k_{p1,2}^2 + \frac{1}{r_0^2 \varepsilon_\infty}\right) \rho_{1,2}^{ex}, \quad (6)$$

128

$$\Delta\varphi_{1,2} = -\frac{4\pi}{\varepsilon_\infty} \rho_{1,2}, \quad (7)$$

129 где $r_0^2 = 3v_F^2/(5\omega_p^2)$ имеет смысл характерного радиуса нелокальности плазмы, $k_{p1,2}^2 =$
 130 $5[\omega_{1,2}(\omega_{1,2} - i\nu) - \omega_p^2/\varepsilon_\infty]/(3v_F^2)$. Введенные в уравнениях (6), (7) обозначения φ^{ex} и ρ^{ex}
 131 играют фактически роль расположенных внутри плазмы сторонних источников колеба-
 132 ний. Для первой гармоники они, очевидно, тождественно равны нулю ($\varphi_1^{ex} \equiv 0$, $\rho_1^{ex} \equiv 0$)
 133 и введены только для более краткой и единой записи результирующих уравнений. Для
 134 колебаний второй гармоники выражения для источников определяется выражениями

$$-2i\omega\rho^{ex} = \frac{1}{2} \operatorname{div} \rho_1 \mathbf{v}_1, \quad (8)$$

135

$$\varphi^{ex} = \frac{m}{4e} \left(\frac{v_0^2}{N_0^2} N_1^2 + \mathbf{v}_1^2 \right), \quad (9)$$

и фактически имеют смысл сторонней осциллирующей плотности заряда (возникающей из-за нелинейного слагаемого в уравнении непрерывности (2)) и потенциала стороннего поля, определяющего дополнительную силу, действующую на заряды плазмы на удвоенной частоте (возникающего из-за нелинейности уравнения состояния (5) и из-за конвективного члена в уравнении (3)).

Система уравнений (7), (6) должна быть дополнена граничными условиями на поверхности наночастицы. Первые из используемых нами граничных условий, вытекают непосредственно из уравнений Максвелла

$$\varphi_n|_S = \varphi_n^{out}|_S \quad (10)$$

$$\varepsilon_\infty \frac{\partial \varphi_n}{\partial \mathbf{n}} \Big|_S = \varepsilon_d \frac{\partial \varphi_n^{out}}{\partial \mathbf{n}} \Big|_S, \quad n = 1, 2, \quad (11)$$

и связывают потенциалы электрического поля внутри наночастицы с соответствующими потенциалами $\varphi_{1,2}^{out}$ в окружающем ее однородном диэлектрике, удовлетворяющими уравнениям Максвелла. Последнее, необходимое для однозначного решения сформулированных уравнений, граничное условие определяется характером движения электронов близ границы наночастицы. В случае принимаемого здесь условия зеркального отражения электронов от поверхности металла соответствующее граничное условие принимает вид,

$$\mathbf{v}_n = -\frac{e}{i(\omega_n - i\nu)m} \nabla \psi_n \quad (12)$$

$$\frac{\partial \psi_n}{\partial \mathbf{n}} \Big|_S = 0, \quad \psi_n = \varphi_n + 4\pi r_0^2 \rho_n + \varphi^{ex}, \quad n = 1, 2, \quad (13)$$

где $\psi_{1,2}$ фактически имеют смысл потенциала скорости электронов на основной и удвоенной гармониках колебаний.

Сформулированная система уравнений, как и в других подобных работах, посвященных исследованию генерации второй гармоники в условиях двойных резонансов, позволяет рассчитать структуру колебаний [31]. Новым основным новым элементом

здесь является здесь учет нелокальности поляризации плазмы не только для основ-
ной, но и для удвоенной гармоник, что позволяет описать возникновение резонансов
объемных плазмонов на этой частоте. Как известно, поле объемных плазмонов силь-
но локализовано внутри наночастицы и соответствующие им резонансы обычно слабо
проявляется в спектрах рассеянного излучения, однако как будет показано далее, воз-
буждение объемных плазмонов на удвоенной частоте может приводить к заметному из-
менению поглощаемой наночастицей мощности. Расчет спектров поглощения в рамках
рассматриваемой модели может быть выполнен следующим образом. Потери энергии
обусловлены наличием в уравнении (3) диссипативной силы, с плотностью $\mu = m\nu\mathbf{f}$.
Средняя за период плотность мощности этой силы очевидным образом может быть
выражена через комплексные амплитуды плотностей потока и скоростей первой и вто-
рой гармоник. Интегрируя по объему наночастицы с учетом соотношений (6), (7) и
граничного условия (13), приходим к следующему выражению для средней за период
мощности потерь во всем объеме наночастицы:

$$Q = \frac{\nu}{2} Re \iiint \left(\frac{\omega}{i(\omega - i\nu)} \rho_1 \psi_1^* + \frac{2\omega}{i(2\omega - i\nu)} \rho_2 \psi_2^* \right) dV. \quad (14)$$

172

$$Q = \frac{\nu}{2} Re \iiint \sum_{n=1,2} \frac{\omega_n}{i(\omega_n - i\nu)} \rho_n \psi_n^* dV. \quad (15)$$

Помимо этого, чтобы выражение для потерь (14) было справедливо для дипольных
плазмонов (первая гармоника колебаний), необходимо учесть дополнительные потери,
обусловленные поверхностными потерями. Для этого, в случае сферической наночасти-
цы, эффективную частоту соударений электронов дипольных плазмонов можно пред-
ставить в виде $\nu_{dip} = \nu + 3v_F/(4a\omega_p)$.

178 2 СФЕРИЧЕСКАЯ НАНОЧАСТИЦА

179 Применительно к сферической наночастице радиуса a , помещенной в однородную среду
 180 с проницаемостью ε_d решение линейной задачи, описывающей колебания на частоте
 181 внешнего поля хорошо известно (см. например [31]), и выражается через сферические
 182 функции Бесселя j_n). Как можно показать, выражения для потенциала и плотности
 183 заряда в этом случае имеют следующий вид

$$C = \frac{-3\varepsilon_d E_0}{\varepsilon + 2\varepsilon_d[1 + (\varepsilon/\varepsilon_\infty - 1)G_1]}, \quad (16)$$

184

$$\rho_{01} = \frac{\varepsilon - 1}{4\pi} k_{p1} \frac{C}{j'_1(\varkappa_1)}, \quad (17)$$

185

$$\rho_1 = C \frac{-k_{p1}^2 a \omega_p^2}{4\pi\omega(\omega - i\nu)} \frac{j_1(k_{p1}r)}{\varkappa_1 j'_1(\varkappa_1)} \cos\theta, \quad \varphi_1 = Cr + \frac{4\pi\rho_1}{\varkappa_1^2 \varepsilon_\infty}, \quad (18)$$

186 где a — радиус сферы, θ и r — полярный угол и радиус, $G_m = j_m(\varkappa_1)/\varkappa_1 j'_m(\varkappa_1)$,
 187 $\varkappa_1 = k_p(\omega)a$, $\varepsilon = \varepsilon_\infty - \omega_p^2/\omega(\omega - i\nu)$. Последнее из перечисленных величин имеет смысл
 188 диэлектрической проницаемости металла в отсутствие нелокальности. Положение наи-
 189 более сильного из них, дипольного поверхностного плазмона (резонанс Ми), без уче-
 190 та пространственной дисперсии, зависит от диэлектрической проницаемости внешней
 191 среды, определяется выражением $\varepsilon + 2\varepsilon_d \approx 0$, и частота генерируемой в наночастице
 192 второй гармоники колебаний может лежать в области частот отвечающей возможно-
 193 сти возбуждения объемных плазмонов. Значения их резонансных частот определяются
 194 общим дисперсионным уравнением:

$$m\varepsilon + \varepsilon_d(m + 1)(1 + m(\varepsilon/\varepsilon_\infty - 1)G_m) = 0, \quad (19)$$

195 (m — номер мультиполя), которое может быть также получено из решения однород-
 196 ной краевой задачи в отсутствие внешнего поля. В интересующем нас случае слабой
 197 пространственной дисперсии $r_0 \ll a$ значения резонансных частот слабо зависят от
 198 параметров окружающей среды и приближенно могут быть найдены из соотношения

$\kappa_1 \approx \eta_{m+1}^k$, где η_{m+1}^k k -й корень сферической функции Бесселя порядка $m + 1$. Из всех
 возможных условий двойных резонансов здесь представляет интерес рассмотрение слу-
 чая с $m=0$ и $m=2$ (монопольные и квадрупольные объемные резонансы соответственно
), поскольку в случае сферической наночастицы, как можно увидеть из вида сторон-
 них источников (8) (9), источники поля второй гармоники могут возбуждать только
 колебания монопольного и квадрупольного типов.

На рисунке (1) проиллюстрированы положения частот резонансов от диэлектриче-
 ской проницаемости, при типичных для металлических наночастиц значениях парамет-
 ров $\nu/\omega_p = 0.02$, $v_F = 1.5 \cdot 10^8$ см/с, $\omega_p = 5$ эВ. Из графика (1) видно как смещаются
 области резонансов при увеличении диэлектрической проницаемости ионного остова
 ϵ_∞ . При этом, чтобы были различимы отдельные резонансы, они должны отличаться
 по частоте больше чем на характерную ширину линии потерь $\nu/2$.

На основании решения краевых задач для трех мультипольных составляющих по-
 тенциала и плотности заряда полная средняя за период мощность потерь может быть
 рассчитана как $Q = Q_{dip} + Q_{mono} + Q_{quad}$, где содержит вклады от дипольных колебаний
 на основной частоте (Q_d) и монопольных и квадрупольных колебаний на удвоенной ча-
 стоте внешнего поля (Q_{mono} , $m = 0$ и Q_{quad} , $m = 2$ соответственно). Более подробное
 описание расчета мощности потерь описано в приложении.

На рисунках (2), (3) представлены зависимости мощности потерь от частоты при
 различных значениях проницаемостей ϵ_∞ и ϵ_d . Сплошной линией указана полная мощ-
 ность потерь, точечной линией – вклад в потери от дипольных колебаний, пунктир и
 пунктир с точкой вклад от монопольных и квадрупольных колебаний соответственно.

Из приведенных графиков видно, что дополнительные резонансы не проявляются в
 виде отдельных пиков на фоне основных потерь энергии, однако из-за этого увеличи-
 вается суммарная мощность потерь. Стоит отметить влияние монопольных резонансов,

224 которые не проявляются в лазерной спектроскопии так как потенциал монополярных ко-
 225 лебаний не выходит за границы частицы, а также не возбуждаются однородным полем.
 226 Так же, в некоторых случаях происходит уширение линии потерь. При этом чем ближе
 227 резонансная частота находится к удвоенной частоте первой гармоники, тем больший
 228 вклад в потери вносит тот или иной тип колебаний.

229 Чтобы показать, насколько восприимчивы двойные резонансы к параметрам внеш-
 230 ней среды можно построить зависимость максимального значения потерь от диэлектри-
 231 ческой проницаемости внешней среды. На рисунке (4) представлены результаты рас-
 232 четов для сферической наночастицы натрия, при характерных для натрия параметрах
 233 $v_F = 1.07 \cdot 10^8$ см/с, $\omega_p = 5.71$ эВ, $\nu = 0.03$ эВ, $E_0 = 10^8$ ВТ/см².

234 В практических задачах чаще сталкиваются с наночастицами покрытыми слоем
 235 диэлектрика, а не находящимися в сплошной среде, как представлено в данной работе.
 236 Однако, модифицируя граничные условия, можно получить следующее дисперсионное
 237 уравнение для наночастицы в слое диэлектрика толщиной b :

$$\varepsilon + \varepsilon_d \frac{m+1}{m} \frac{1 - K_m}{1 + (m+1)K_m/m} = 0, \quad K_m = \left(\frac{a}{b}\right)^{2m+1} \frac{\varepsilon_d - 1}{\varepsilon_d + (m+1)/m} \quad (20)$$

238 3 ЗАКЛЮЧЕНИЕ

239 В работе продемонстрировано, что в сферических металлических наноструктурах воз-
 240 можно возбуждение двойных плазмонных резонансов, включающих поверхностные плаз-
 241 моны на основной частоте и объемные плазмоны на удвоенной частоте. Это явление
 242 обусловлено нелинейными эффектами, которые усиливаются благодаря резонансным
 243 условиям. Результаты показывают, что такие резонансы приводят к увеличению об-
 244 щей мощности поглощения энергии наночастицей, а также могут влиять на уширение
 245 спектральных линий. Интерес так же представляет возбуждение монополярных колеба-
 246 ний, которые обычно слабо проявляются. С практической стороны, благодаря эффекту

247 двойного резонанса и высокой чувствительности к параметрам внешней среды наноча-
248 стицы могут служить источниками излучения для нужд диагностики оптических сред
249 и спектроскопии.

Для второй гармоники, в случае сферической наночастицы, можно получить вид функций для сторонних источников:

$$\varphi^{ex} = \frac{e}{4\pi\omega_p^2} [(4\pi)^2 r_0^2 \rho_1^2 - \frac{\omega_p^2}{(\omega - i\nu)^2} (\nabla\psi_1)^2], \quad (\text{П1})$$

$$\rho^{ex} = \frac{e}{4m\omega(\omega - i\nu)} (-4\pi\rho_1^2 \frac{w(\omega - i\nu)}{\omega_p^2} + \nabla\psi_1 \nabla\rho_1). \quad (\text{П2})$$

Поскольку выражения для потенциала и электронной плотности на первой гармонике известно (18), можно заметить что сторонние источники (8), (9) состоят из суммы слагаемых пропорциональных квадратам косинуса и синуса. Значит, для дальнейшего решения этой задачи методом разделения переменных, можно представить правую часть уравнения (6) (сторонние источники) в виде произведений некоторых радиальных функций на полиномы Лежандра P_m :

$$\varphi^{ex} = F_0^\varphi(r)P_0(\cos\theta) + F_2^\varphi(r)P_2(\cos\theta), \quad (\text{П3})$$

$$\rho^{ex} = F_0^\rho(r)P_0(\cos\theta) + F_2^\rho(r)P_2(\cos\theta), \quad (\text{П4})$$

где $F_{0,2}^{\varphi,\rho}(r)$ радиальные функции при соответствующих полиномах Лежандра. Представление сторонних источников в виде (П3), (П4), явно показывает наличие монопольных (P_0) и квадрупольных (P_2) источников. А значит и искомые функции φ_2 и ρ_2 можно представить в аналогичном виде:

$$\varphi_2 = R_0(r)P_0(\cos\theta) + R_2(r)P_2(\cos\theta), \quad (\text{П5})$$

$$\rho_2 = \Phi_0(r)P_0(\cos\theta) + \Phi_2(r)P_2(\cos\theta), \quad (\text{П6})$$

где $R_{0,2}$, $\Phi_{0,2}$ неизвестные радиальные функции. Тогда от системы уравнений () переходим к следующей (для $m = 0, 2$):

$$(\hat{L}_m + \kappa_p^2)R_m = -\frac{1}{4\pi r_0^2}\hat{L}_m F_m^\varphi + \frac{2\omega(2\omega - i\nu)}{\omega_p^2 r_0^2}F_m^\rho, \quad (\text{П7})$$

267

$$\hat{L}_m \Phi_m = -\frac{4\pi}{\varepsilon_\infty}R_m, \quad \hat{L}_n = \frac{1}{r^2}\frac{\partial}{\partial r}\left(r^2\frac{\partial}{\partial r}\right) - \frac{m(m+1)}{r^2}. \quad (\text{П8})$$

268 Дополняя уравнения (П7), (П8) граничными условиями, можно решать образовавшуюся систему уравнений относительно радиальных функций $(R_{0,2}, \Phi_{0,2})$ различными методами решения дифференциальных уравнений. В данной работе система решалась численными методами, с помощью метода Галеркина и метода матричной прогонки. Мощность потерь можно рассчитать по найденным радиальным функциям следующим образом:

$$Q_m = \frac{2\pi\nu}{2m+1} \text{Re} \frac{2\omega}{i(2\omega - i\nu)} \int_0^a R_m (\Phi_m + 4\pi r_0^2 R_m + F_m^\varphi)^* r^2 dr, \quad m = 0, 2. \quad (\text{П9})$$

274 В ведённых обозначениях, $Q_{mono} \equiv Q_0$ и $Q_{quad} \equiv Q_2$ мощности потерь монопольной и квадрупольной составляющей второй гармоники соответственно.

276 **Список литературы**

- 277 [1] Maier S. A. Plasmonics: Fundamentals and Applications. New York: Springer, 2007.
278 229 p.
- 279 [2] Gramotnev D. K., Bozhevolnyi S. I. // Nat. Photonics. 2010. V. 4. P. 83–91. doi:
280 10.1038/nphoton.2009.282
- 281 [3] Castro-Lopez M., Brinks D., Sapienza R., van Hulst N. F. // Nano Lett. 2011. V. 11.
282 P. 4674–4678. doi: 10.1021/nl202255g
- 283 [4] Biagioni P., Brida D., Huang J.-S., et al. // Nano Lett. 2012. V. 12, No. 7. P. 2941–2946.
284 doi: 10.1021/nl300616s.
- 285 [5] Chen H., Sun M., Ma J., et al. // ACS Photonics. 2021. V. 8, No. 4. P. 1084–1092. doi:
286 10.1021/acsphotonics.0c01747.
- 287 [6] Ko K.D., Kumar A., Fung K.H., et al. // Nano Lett. 2011. V. 11, No. 1. P. 61–65. doi:
288 10.1021/nl102751m.
- 289 [7] Danckwerts M., Novotny L. // Phys. Rev. Lett. 2007. V. 98. 026104. doi:
290 10.1103/PhysRevLett.98.026104.
- 291 [8] Harutyunyan H., Volpe G., Quidant R., et al. // Phys. Rev. Lett. 2012. V. 108. 217403.
292 doi: 10.1103/PhysRevLett.108.217403.
- 293 [9] Li J.-B., Liang S., Xiao S., He M.-D., Kim N.-C., Chen L.-Q., Wu G.-H., Peng Y.-X., Luo
294 X.-Y., Guo Z.-P. // Opt. Express. 2016. V. 24. P. 2360–2369. doi: 10.1364/OE.24.002360
- 295 [10] E. Paspalakis, S. Evangelou, S. G. Kosionis, and A. F. Terzis, J. Appl. Phys., vol. 115,
296 no. 8, p. 083106, 2014, doi: 10.1063/1.4866424.

- [11] S. K. Singh, M. Kurtulus Abak, and M. E. Tasgin, Phys. Rev. B, vol. 93, no. 3, p. 035410, 2016, doi: 10.1103/PhysRevB.93.035410.
- [12] E. Drobnýh and M. Sukharev, J. Chem. Phys., vol. 152, no. 9, p. 094706, 2020, doi: 10.1063/1.5143238.
- [13] D. A. Smirnova, I. V. Shadrivov, A. E. Miroshnichenko, A. I. Smirnov, and Y. S. Kivshar, Phys. Rev. B, vol. 90, no. 3, p. 035412, 2014, doi: 10.1103/PhysRevB.90.035412.
- [14] Torres-Torres C. // Int. J. Nanomedicine. 2010. P. 925. doi: 10.2147/ijn.s12463
- [15] P. A. Franken, A. E. Hill, C. P. Peters, and G. Weinreich, Phys. Rev. Lett., vol. 7, no. 7, pp. 118–119, 1961, doi: 10.1103/PhysRevLett.7.118.
- [16] Bloembergen N., Pershan P. S. // Phys. Rev. 1962. V. 128, No. 2. P. 606–622. doi: 10.1103/physrev.128.606
- [17] J. Butet, P.-F. Brevet, and O. J. F. Martin, ACS Nano, vol. 9, no. 11, pp. 10545–10562, 2015, doi: 10.1021/acs.nano.5b04373.
- [18] Butet J., Russier-Antoine I., Jonin C. и др. // Nano Lett. 2012. V. 12, No. 3. P. 1697–1701. doi: 10.1021/nl300203u
- [19] Gildenburg V. B., Kondrat’ev I. G. // Radio Eng. Electr. Phys. 1965. V. 10, No. 4. P. 560.
- [20] Ruppín R. // Phys. Rev. B. 1975. V. 11, No. 8. P. 2871–2876. doi: 10.1103/physrevb.11.2871.
- [21] Gildenburg V. B., Kostin V. A., Pavlichenko I. A. // Phys. Plasmas. 2016. V. 23, No. 3. Art. no. 032120. doi: 10.1063/1.4944395.

- [22] Elibol K., Downing C., Hobbs R. G. // Nanotechnology. 2022. V. 33, No. 47. Art. no. 475203. doi: 10.1088/1361-6528/ac8812.
- [23] Kryshchal A., Khshanovska O. // Sci. Rep. 2025. V. 15. Art. no. 5335. doi: 10.1038/s41598-025-88496-1.
- [24] Haas F. Quantum plasmas: An hydrodynamic approach. New York : Springer, 2011. 65 p.
- [25] Electromagnetic surface modes / ed. by A. D. Boardman. Chichester : Wiley, 1982. 770 p.
- [26] Manfredi G., Hervieux P.-A., Hurst J. // Rev. Mod. Plasma Phys. 2021. V. 5. P. 7. doi: 10.1007/s41614-021-00056-y
- [27] Forstmann F., Gerhardts R. R. Metal Optics Near the Plasma Frequency. Berlin : Springer-Verlag, 1986. 132 p.
- [28] Sipe J. E., So V. C. Y., Fukui M., Stegeman G. I. // Phys. Rev. B. 1980. V. 21. P. 4389–4396. doi: 10.1103/PhysRevB.21.4389
- [29] David C., García de Abajo F. J. // J. Phys. Chem. C. 2011. V. 115. P. 19470–19477. doi: 10.1021/nn5038527
- [30] Takeuchi T., Yabana K. // Phys. Rev. A. 2022. V. 106. Art. no. 063517. doi: 10.1103/PhysRevA.106.063517
- [31] Hua X. M., Gersten J. I. // Phys. Rev. B. 1986. V. 33, No. 6. P. 3756.

А РИСУНКИ И ТАБЛИЦЫ

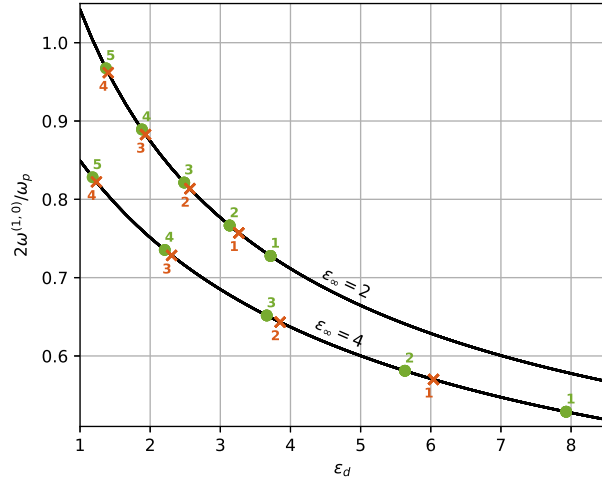


Рис. 1: Положение частоты основного дипольного поверхностного резонанса (сплошная линия) в зависимости от диэлектрической проницаемости внешней среды, а также положения резонансных частот при $m = 0, 2$ (монопольные и квадрупольные объемные резонансы), при разной диэлектрической проницаемости ионного остова

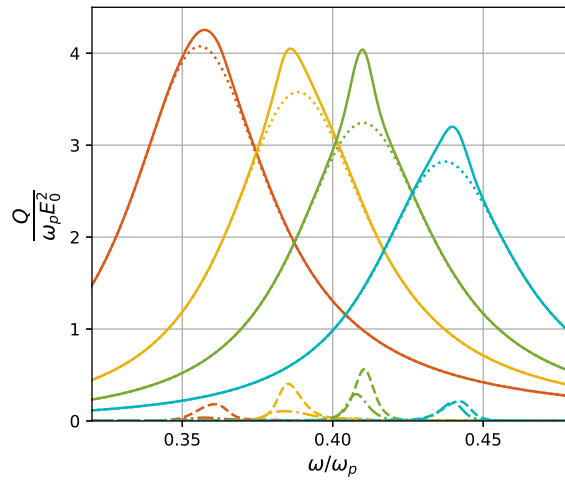


Рис. 2: Зависимость мощности потерь от частоты при $\varepsilon_\infty = 2$, $\varepsilon_d = 4, 3, 2.5, 2$ соответственно слева направо. Сплошной линией указана полная мощность потерь, точечной линией – вклад в потери от дипольных колебаний, пунктир и пунктир с точкой вклад от монопольных и квадрупольных колебаний соответственно.

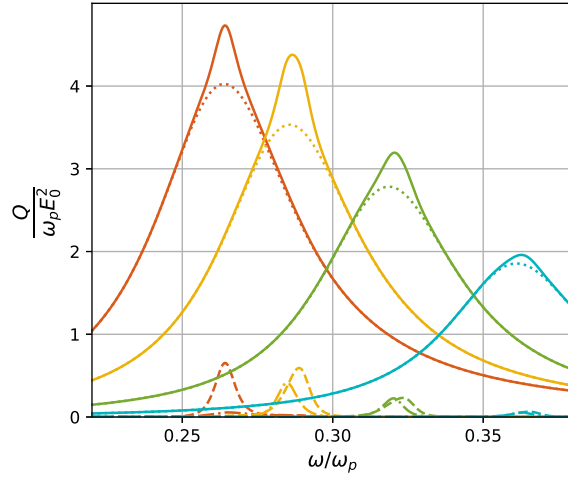


Рис. 3: Зависимость мощности потерь от частоты при $\varepsilon_\infty = 4$, $\varepsilon_d = 4, 3, 2.5, 2$ соответственно слева направо. Сплошной линией указана полная мощность потерь, точечной линией – вклад в потери от дипольных колебаний, пунктир и пунктир с точкой вклад от монопольных и квадрупольных колебаний соответственно.

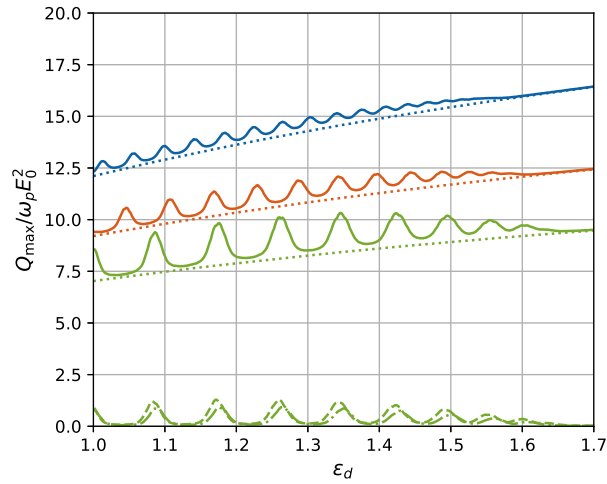


Рис. 4: Зависимость максимальной мощности потерь для сферической наночастицы натрия радиусом =