

1 ВВЕДЕНИЕ

2 Металлические наноструктуры привлекают к себе большое внимание благодаря своим
3 уникальным характеристикам, связанным с возможностью возбуждения в них плаз-
4 монных резонансов на частоте падающего на наночастицу электромагнитного излуче-
5 ния. Основной интерес к таким плазмонным наноструктурам обусловлен их уникальной
6 способностью локализовать электромагнитные поля на нанометровых масштабах, су-
7 щественно меньших дифракционного предела, что позволяет контролировать свойства
8 света в размерах, намного меньших его длины волны.[A]

9 Благодаря плазмонным резонансам в наноструктурах происходит существенное уве-
10 личение локальной плотности энергии поля, что приводит к возможности проявления в
11 них различного рода нелинейных эффектов, включающих многофотонную люминесцен-
12 цию [], четырехволновое смешивание [], и генерацию гармоник оптического излучения
13 [вт гарм тр гарм].

14 В частности, явление генерации второй гармоники в наноструктурах, возможность
15 возникновения которого в ограниченных металлических объектах была впервые обна-
16 ружена экспериментально и объяснена теоретически в работах [5, 6], является в на-
17 стоящее время основой для широкого круга практических применений, включающего
18 диагностику наноструктур [см эксп обзор] и оптических сред [7].

19 Важным фактором, благодаря которому наноструктуры и основанные на них мета-
20 материалы могут служить эффективным инструментом для генерации второй гармони-
21 ки, является возможность резонансного усиления поля не только основной гармоники
22 оптического излучения, но и его второй гармоники при совпадении удвоенной частоты
23 с собственной частотой другой плазмонной модой наноструктуры.

24 К настоящему моменту явление двойного плазмонного резонанса исследовалось фак-
25 тически только для наноструктур обеспечивающих одновременное возбуждение двух

26 различных поверхностных плазмонов наночастицы на основной и удвоенной гармонич-
27 ках падающего излучения.

28 Однако в общем случае в наноструктуре, помимо поверхностных плазмонов могут
29 существовать и объемные плазмоны ω_p — моды коллективных электронных колебаний,
30 представляющие собой стоячие плазменные (Ленгмюровские) волны и возникающие
31 из-за пространственной дисперсии (нелокальности поляризуемости плазмы). Объем-
32 ные плазмоны, как известно, могут сильно проявлять себя в случае, когда источник
33 возбуждения коллективных электронных колебаний находится внутри наночастицы и
34 характеризуется неоднородным распределением поля, что, например имеет место в за-
35 дачах спектроскопии характеристических потерь энергии электронами (англ. Electron
36 Energy Loss Spectroscopy) при рассеянии пучков заряженных частиц наноструктурами.

37 Подобная ситуация может возникнуть и в задачах генерации второй гармоники,
38 когда обусловленные нелинейностью токи второй гармоники, возбуждаемые при ре-
39 зонансе поверхностного плазмона на основной частоте колебаний, могут возбуждать
40 объемные плазмонные колебания в наночастице. Данный эффект может иметь место,
41 например, в случае наноструктуры простейшей формы, металлической сферической на-
42 ночастицы, однако к настоящему моменту двойные плазмонные резонансы типа поверх-
43 ностный плазмон \rightarrow объемный плазмон фактически не были исследованы и являются
44 предметом исследования данной работы.

45 В данной работе на основании гидродинамической модели ω_p исследуются нелиней-
46 ные эффекты, обусловленные возникновением резонансов объемных плазмонов на удво-
47 енной частоте в условиях, когда частота основной гармоники наночастицы также ис-
48 пытывает резонанс и совпадает с частотой дипольного поверхностного плазмона нано-
49 частицы (хорошо известный резонанс Ми). Работа организована следующим образом:
50 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 удвоенной гармониках внешнего поля в малой металлической наночастице произвольной формы. Далее описано решение этих задач применительно к случаю сферической наночастицы, и исследованы условия отвечающие условию возбуждения в наночастицах двойных резонансов типа поверхностный плазмон – объемный плазмон. После приводятся результаты расчетов, иллюстрирующие влияние исследуемых резонансов на частотные зависимости сечения поглощения сферических наночастиц и сформулированы основные результаты работы.

1 ПОСТАНОВКА ЗАДАЧИ

Рассмотрим металлическую наночастицу произвольной формы, находящуюся в заданном внешнем поле падающей электромагнитной волны, и находящуюся в среде с диэлектрической проницаемостью ε_d . Как известно, достаточно подробное описание нелинейной динамики носителей в квазиклассическом приближении может быть получено с помощью набора уравнений гидродинамики (уравнение непрерывности и уравнение Эйлера), описывающих электронную плазму как сжимаемую заряженную жидкость [ОБЗ ТЕОР ГД 12–15].

При дальнейшем построении физической модели исследуемых двойных резонансов будем считать выполненными ряд приближений, а именно будем предполагать, что (I) размеры наночастицы малы по сравнению с длиной падающей волны и допустимо квазистатическое приближение для описания поля внутри и вблизи поверхности наночастицы (II) вклад в магнитную составляющую силы Лоренца, действующую на электроны в металле пренебрежимо мал, (III) электроны находятся внутри бесконечно глубокой потенциальной ямы, то есть будем пренебрегать эффектом размывания про-

75 филья электронной плотности близ границы металла (так называемый spill-out effect)
 76 ||, возникающим при учете давления электронов и (IV) положительный заряд ионного
 77 остова с равномерной плотностью распределен по объему наночастицы (предполагает-
 78 ся, что в отсутствие внешнего поля электроны, как и ионы, распределены равномерно
 79 по объему частицы с плотностью N_0 , а диэлектрическая проницаемость ионного остова
 80 материала частицы равна ε_∞):

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

81 где $v_F = \hbar(3\pi^2 N_0)^{1/3}/m$ — скорость Ферми, c — скорость света, e и m — заряд и масса
 82 электрона, \hbar — постоянная Планка, L — характерный размер частицы, ω — частота
 83 падающего поля, $\omega_p^2 = 4\pi e^2 N_0/m$ — плазменная частота.

84 Вместе с условиями применимости гидродинамического подхода указанные выше
 85 условия несколько сужают область применимости рассматриваемой модели, однако по-
 86 скольку ранее двойные плазмонные резонансы обсуждаемого здесь типа фактически не
 87 исследовались, такое упрощение модели представляется оправданным первым шагом
 88 на пути построения более точной модели. Таким образом, с учетом указанных предпо-
 89 ложений, нелинейная динамика коллективных электронных колебаний в наночастице
 90 подчиняется системе уравнений:

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

91

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

92 где \mathbf{v} — скорость электронов, N — возмущённая концентрация электронов, ν — эффектив-
 93 ная частота соударений электронов, $\mathbf{f} = N\mathbf{v}$ имеет смысл потока электронов, p — давле-
 94 ние электронов. Конкретный вид выражения для последней из перечисленных величин,
 95 фактически отвечающей за нелокальность поляризационного отклика плазмы, являл-
 96 ся предметом множества дискуссий и в настоящее время существует широкий спектр

97 моделей, описывающих эту величину применительно к различным условиям. В рамках
 98 рассматриваемой здесь простой модели мы используем следующее феноменологическое
 99 уравнение состояния, отвечающее исследуемому здесь случаю быстрого адиабатическо-
 100 го процесса и позволяющее получить из описанных выше уравнений () известный закон
 101 дисперсии как для поверхностных, так и для объемных плазмонов: $p = p_0(N/N_0)^\gamma$, где
 102 $p_0 = mv_f^2 N_0/5$, $\gamma = 3$.

103 Следуя обычной процедуре метода возмущений, применяемого в случае слабой нели-
 104 нейности, представим в уравнениях неизвестные плотность электронов, скорость и на-
 105 пряженность поля в виде суммы гармонических слагаемых, изменяющихся на частоте,
 106 кратной частоте внешнего поля. Далее сопоставляя в получившихся уравнениях вели-
 107 чины одинакового порядка малости, получаем следующие уравнения, определяющие
 108 комплексные амплитуды плотности заряда и потенциала поля для основной ($\omega_1 = \omega$,
 109 $n = 1$) и удвоенной ($\omega_2 = 2\omega$, $n = 2$) гармоник.

$$\Delta\rho_n + k_p^2(\omega_n)\rho_n = -\frac{1}{4\pi r_0^2}\Delta\varphi^{ex} + \frac{\omega_n(\omega_n - i\nu)}{\omega_p^2 r_0^2}\rho^{ex} \quad (4)$$

$$\Delta\varphi_n = -\frac{4\pi}{\varepsilon_\infty}\rho_n, \quad n = 1, 2. \quad (5)$$

111 ОБОЗНАЧЕНИЕ R0 ВВЕСТИ Введенные в уравнения обозначения φ^{ex} и ρ^{ex} играют
 112 фактически роль расположенных внутри плазмы сторонних источников колебаний. Для
 113 первой гармоники они, очевидно, тождественно равны нулю и введены только для более
 114 краткой и единой записи результирующих уравнений. Для колебаний второй гармоники
 115 выражения для источников определяется выражениями

$$-2i\omega\rho^{ex} = \frac{1}{2}\operatorname{div}\rho_1\mathbf{v}_1, \quad (6)$$

$$\varphi^{ex} = \frac{m}{4e}\left(\frac{v_0^2}{N_0^2}N_1^2 + \mathbf{v}_1^2\right), \quad (7)$$

117 и фактически имеют смысл сторонней осциллирующей плотности заряда, (возникаю-
 118 щей из-за нелинейного слагаемого в уравнении непрерывности ()) и потенциала сторон-

119 него поля, определяющего дополнительную силу, действующую на заряды плазмы на
 120 удвоенной частоте (возникающего из-за нелинейности уравнения состояния () и из-за
 121 конвективного члена в уравнении ()).

122 Система уравнений () должна быть дополнена граничными условиями на поверхно-
 123 сти наночастицы. Первые из используемых нами граничных условий, вытекают непо-
 124 средственно из уравнений Максвелла

$$\varphi_n|_S = \varphi_n^{out}|_S \quad (8)$$

125

$$\varepsilon_\infty \frac{\partial \varphi_n}{\partial \mathbf{n}} \Big|_S = \varepsilon_d \frac{\partial \varphi_n^{out}}{\partial \mathbf{n}} \Big|_S, \quad n = 1, 2, \quad (9)$$

126 и связывают потенциалы электрического поля внутри наночастицы с соответствующи-
 127 ми потенциалами $\varphi_{1,2}^{out}$ в окружающем ее однородном диэлектрике, удовлетворяющими
 128 уравнению ЧЧЧ. Последнее, необходимое для однозначного решения сформулирован-
 129 ных уравнений, граничное условие определяется характером движения электронов близ
 130 границы наночастицы. В случае принимаемого здесь условия зеркального отражения
 131 электронов от поверхности металла соответствующее граничное условие принимает вид,

$$\mathbf{v}_n = -\frac{e}{i(\omega_n - i\nu)m} \nabla \psi_n \quad (10)$$

132

$$\frac{\partial \psi_n}{\partial \mathbf{n}} \Big|_S = 0, \quad \psi_n = \varphi_n + 4\pi r_0^2 \rho_n + \varphi^{ex}, \quad n = 1, 2, \quad (11)$$

133 где $\psi_{1,2}$ фактически имеют смысл потенциала скорости электронов на основной и удво-
 134 енной гармониках колебаний.

135 Сформулированная система уравнений (), как и в других подобных работах, по-
 136 священных исследованию генерации второй гармоники в условиях двойных резонан-
 137 сов, позволяет рассчитать структуру колебаний []. Новым основным новым элементом
 138 здесь является здесь учет нелокальности поляризации плазмы не только для основ-
 139 ной, но и для удвоенной гармоники, что позволяет описать возникновение резонансов

объемных плазмонов на этой частоте. Как известно, поле объемных плазмонов сильно локализовано внутри наночастицы и соответствующие им резонансы обычно слабо проявляются в спектрах рассеянного излучения, однако как будет показано далее, возбуждение объемных плазмонов на удвоенной частоте может приводить к заметному изменению поглощаемой наночастицей мощности. Расчет спектров поглощения в рамках рассматриваемой модели может быть выполнен следующим образом. Потери энергии обусловлены наличием в уравнении (1.2) 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 второй гармоник. Интегрируя по объему наночастицы V с учетом соотношений () и граничного условия (), приходим к следующему выражению для средней за период мощности потерь во всем объеме наночастицы:

$$Q = \frac{\nu}{2} \text{Re} \iiint \left(\frac{\omega}{i(\omega - i\nu)} \rho_1 \psi_1^* + \frac{2\omega}{i(2\omega - i\nu)} \rho_2 \psi_2^* \right) dV. \quad (12)$$

2 ЛИТЕРАТУРА

Ссылки на список литературы в тексте приводятся в квадратных скобках [3, 5–9]. Нумерация должна соответствовать порядку упоминания источников в тексте. Каждый пункт в списке литературы должен содержать только один источник. Не допускается указывать в одном пункте списка несколько статей (в том числе несколько самостоятельных частей одной статьи). Ссылки на конкретную страницу, раздел, формулу в цитируемом источнике даются следующим образом: [1, с. 5], [1, раздел 2], [1, формула (4)].

Образцы ссылок на типовые источники (статьи в журналах, книги и т. д.) приведены ниже, в разделе «Список литературы». Общие принципы построения ссылок следующие:

— для статей в периодических изданиях и сборниках обязательно следует указывать

DOI (при наличии);
— если авторов (редакторов) в цитируемом источнике четверо или менее, то указываются все. Если их пятеро или более, то указываются первые трое и дописывается «и др.» / «, et al.».

3 РИСУНКИ И ТАБЛИЦЫ

Статья может содержать рисунки и таблицы. Их следует размещать на отдельных страницах в конце документа.

Если рисунок представляет собой какой-либо график, диаграмму и т. д., то его желательно предоставить в векторном формате (eps, pdf и т. п.), воспользовавшись соответствующими опциями экспорта из используемой математической или лабораторной программной среды. При невозможности предоставить рисунок в векторном формате принимается и растровый вариант (png, bmp и т. п.), с которого желательно убрать координатную сетку.

Если рисунок представляет собой фотографию установки, образца и т. п., то его нужно предоставить в растровом формате.

Ширина рисунков должна быть равна 80 или 160 мм. Разрешение растровых рисунков должно быть не хуже 300 точек на дюйм (300 dpi). К печати принимаются цветные рисунки.

При наборе таблиц величины одной размерности следует располагать в столбцах, а не в строках (если позволяет размер таблицы).

Физические величины в названиях осей и шкал на графиках, а также в столбцах таблиц следует обозначать буквами (как в формулах): например, вместо «скорость (м/с)» следует писать « V , м/с».

186 4 БЛАГОДАРНОСТИ

187 Абзац с благодарностями размещается после основного текста (после заключения или
188 выводов):

189 Работа выполнена при поддержке Российского научного фонда (проект 24-02-00000),
190 Совета по грантам Президента РФ для государственной поддержки молодых россий-
191 ских учёных и по государственной поддержке ведущих научных школ РФ (проект МК-
192 0000.2024.1.2), Министерства науки и высшего образования РФ в рамках государствен-
193 ного задания ИПФ РАН (проект FFUF-2024-0000).

194 ПРИЛОЖЕНИЕ

195 Статья может включать одно или несколько приложений, которые размещаются меж-
196 ду абзацем с благодарностями и списком литературы. Если приложение одно, то оно
197 именуется «ПРИЛОЖЕНИЕ». Нумерация формул в нём отдельная: (П1), (П2), (П3).
198 Если приложений два или более, то они именуются «ПРИЛОЖЕНИЕ 1», «ПРИЛО-
199 ЖЕНИЕ 2» и т. д. В каждом таком приложении нумерация формул отдельная: (П1.1),
200 (П1.2), (П1.3) в приложении 1, (П2.1), (П2.2), (П2.3) в приложении 2 и так далее. В до-
201 полнение к слову «ПРИЛОЖЕНИЕ» названия приложений могут включать также со-
202 ответствующие смысловые заголовки (как у обычных разделов).

203 Список литературы

204 [1] Гинзбург В. Л. Распространение электромагнитных волн в плазме. Изд. 2-е, пере-
205 раб. М. : Наука, 1967. 684 с. [\[ссылка на монографию; издание указывается при](#)
206 [необходимости; указывается общее число страниц\]](#)

- 207 [2] Плазменная гелиогеофизика. В 2 т. Т. 2 / под ред. Л. М. Зеленого, И. С. Веселовско-
208 го. М. : Физматлит, 2008. 560 с. [\[ссылка на коллективную монографию; указывается](#)
209 [общее число страниц\]](#)
- 210 [3] Шкляр Д. Р. // Плазменная гелиогеофизика. В 2 т. Т. 2 / под ред. Л. М. Зеленого,
211 И. С. Веселовского. М. : Физматлит, 2008. С. 390–553. [\[ссылка на отдельную статью](#)
212 [в коллективной монографии; название статьи опускается; указывается соответству-](#)
213 [ющий диапазон страниц; DOI статьи при наличии указывается обязательно\]](#)
- 214 [4] Balanis C. A. Advanced engineering electromagnetics. 2nd ed. Hoboken : Wiley, 2012.
215 1040 p. [\[ссылка на англоязычную монографию; издание указывается при необходи-](#)
216 [мости; указывается общее число страниц\]](#)
- 217 [5] The THEMIS mission / ed. by J. L. Burch, V. Angelopoulos. New York : Springer-Verlag,
218 2009. 587 p. [\[ссылка на англоязычную коллективную монографию; указывается](#)
219 [общее число страниц\]](#)
- 220 [6] Harvey P., Taylor E., Sterling R., Cully M. // The THEMIS mission / ed. by J. L. Burch,
221 V. Angelopoulos. New York : Springer-Verlag, 2009. P. 117–152. doi: 10.1007/s11214-
222 008-9416-2 [\[ссылка на отдельную статью в англоязычной коллективной моногра-](#)
223 [фии; название статьи опускается; указывается соответствующий диапазон страниц;](#)
224 [DOI статьи при наличии указывается обязательно\]](#)
- 225 [7] Бабин А. А., Киселев А. М., Правденко К. И. и др. // Успехи физ. наук. 1999. Т. 169,
226 № 1. С. 80–84. doi: 10.3367/UFNr.0169.1999011.0080 [\[ссылка на статью в журнале;](#)
227 [название статьи опускается; название журнала приводится в сокращённом виде;](#)
228 [указывается соответствующий диапазон страниц; DOI статьи при наличии указы-](#)
229 [вается обязательно\]](#)

- 230 [8] Balmain K.G. // IEEE Trans. Antennas Propag. 1964. V. 12, No. 5. P. 605–617. doi:
231 10.1109/TAP.1964.1138278 [ссылка на статью в англоязычном журнале; название
232 статьи опускается; название журнала приводится в сокращённом виде; указыва-
233 ется соответствующий диапазон страниц; DOI статьи при наличии указывается
234 обязательно]
- 235 [9] Myers D. J., Espenlaub A. C., Gelzinyte K., et al. // Appl. Phys. Lett. 2020. V. 116,
236 No. 9. Art. no. 091102. doi: 10.1063/1.5125605 [ссылка на статью в англоязычном
237 журнале, где вместо нумерации страниц используется нумерация статей; название
238 статьи опускается; название журнала приводится в сокращённом виде; DOI статьи
239 при наличии указывается обязательно]
- 240 [10] Шарыкин И. Н., Зимовец И. В. // 14-я ежегодная конференция «Физика плазмы
241 в Солнечной системе». 11–15 февраля 2019 г., Москва, Россия. С. 72. [ссылка на
242 статью в сборнике материалов конференции; название статьи опускается; указы-
243 ваются дата и место проведения; указывается соответствующий диапазон страниц;
244 DOI статьи при наличии указывается обязательно]
- 245 [11] Macotela E. L., Clilverd M., Manninen J. // VERSIM 2018 Workshop. Abstracts. 19–
246 23 March 2018, Apatity, Russia. P. 3. [ссылка на статью в англоязычном сборнике
247 материалов конференции; название статьи опускается; указываются дата и место
248 проведения; указывается соответствующий диапазон страниц; DOI статьи при на-
249 личии указывается обязательно]
- 250 [12] Баханов В. В., Демакова А. А., Зуйкова Э. М. Определение спектров короткомас-
251 штабных ветровых волн оптическим методом : препринт № 814. Нижний Новгород :
252 Ин-т прикладной физики РАН, 2017. 8 с. [ссылка на препринт; указывается общее
253 число страниц]

- [13] Poggio A. J., Adams R. W. Approximations for terms related to the kernel in thin-wire integral equations : techn. rep. AFWL-TR-76-98. Livermore : Lawrence Livermore Laboratory, 1977. 44 p. [\[ссылка на англоязычный технический отчёт; указывается общее число страниц\]](#)
- [14] Beasley M. A. <https://arxiv.org/abs/2003.04093> [\[ссылка на препринт в arXiv\]](#)
- [15] Зотова И. В. Генерация, усиление и нелинейная трансформация импульсов сверхизлучения релятивистскими электронными пучками и сгустками : дис. ... д-ра физ.-мат. наук. Нижний Новгород, 2014. 291 с. [\[ссылка на диссертацию; указывается общее число страниц\]](#)
- [16] Манаков С. А. Экспериментальные исследования структурно-неоднородных сред методами когерентной акустики : автореф. дис. ... канд. физ.-мат. наук. Нижний Новгород, 2016. 24 с. [\[ссылка на автореферат диссертации; указывается общее число страниц\]](#)
- [17] Manninen J. Some aspects of ELF-VLF emissions in geophysical research : PhD thesis. Oulu, 2005. 194 p. [\[ссылка на англоязычную диссертацию; указывается общее число страниц\]](#)
- [18] <https://radiophysics.unn.ru/> [\[ссылка на интернет-ресурс\]](#)
- [19] Пат. 2637215 РФ, МПК В02С 19/16 (2006.01), В02С 17/00 (2006.01). Вибрационная мельница : № 2017105030 : заявл. 15.02.2017 : опубл. 01.12.2017 / Артеменко К. И., Богданов Н. Э. ; заявитель БГТУ. 8 с. [\[ссылка на патент РФ; индексы МПК/МКИ указываются при наличии; заявитель указывается при необходимости; указывается общее число страниц\]](#)

- 276 [20] Пат. 6147647 США, МПК H01Q 1/38. Circularly polarized dielectric resonator
277 antenna : № 09/150157 : заявл. 09.09.1998 : опубл. 14.11.2000 / Tassoudji M.A.,
278 Ozaki E. T., Lin Y. C. 14 с. [ссылка на патент США; индексы МПК/МКИ указыва-
279 ются при наличии; заявитель указывается при необходимости; указывается общее
280 число страниц]
- 281 [21] Авт. свид. 1007970 СССР, МКИ В25J 15/00. Устройство для захвата неориентиро-
282 ванных деталей типа валов : № 3360585/25-08 : заявл. 23.11.1981 : опубл. 30.03.1983 /
283 Баулин В. С., Кемайкин В. Г. 2 с. [ссылка на авторское свидетельство; индексы
284 МПК/МКИ указываются при наличии; указывается общее число страниц]
- 285 [22] ГОСТ Р 51771-2001. Аппаратура радиоэлектронная бытовая. Входные и выходные
286 параметры и типы соединений. Технические требования. М. : Госстандарт России,
287 2001. 31 с. [ссылка на стандарт; указывается общее число страниц]
- 288 [23] ISO 26324:2012. Information and documentation. Digital object identifier system.
289 Geneva : ISO, 2012. 24 р. [ссылка на англоязычный стандарт; указывается общее
290 число страниц]