A [[1,2, Maier, S. A. Plasmonics: Fundamentals and Applications;

Springer: New York, 2007.6. Gramotnev, D. K.; Bozhevolnyi, S. I. Plasmonic Beyond the Diﬀraction Limit. Nat. Photonics 2010, 4, 83–91.]

]

multiphoton excited luminescence

**[Castro-Lopez, M.; Brinks, D.; Sapienza, R.; van Hulst, N. F. Aluminum for Nonlinear Plasmonics: Resonance-Driven Polarized Luminescence of Al, Ag, and Au Nanoantennas. Nano Lett. 2011, 11, 4674–4678.**

**Biagioni, P.; Brida, D.; Huang, J.-S.; Kern, J.; Duò, L.; Hecht, B.; Finazzi, M.; Cerullo, G. Dynamics of Four-Photon Photoluminescence in Gold Nanoantennas. Nano Lett. 2012, 12, 2941–2947.**

**Ko, K. D.; Kumar, A.; Fung, K. H.; Ambekar, R.; Liu, G. L.; Fang, N. X.; Kimani, J.; Toussaint, C. Nonlinear Optical Response from Arrays of Au Bowtie Nanoantennas. Nano Lett. 2011, 11, 61–65.,** [**https://pubs.acs.org/doi/abs/10.1021/acsphotonics.0c01747**](https://pubs.acs.org/doi/abs/10.1021/acsphotonics.0c01747)**],**

four-wave mixing

**[21. Danckwerts, M.; Novotny, L. Optical Frequency Mixing at Coupled Gold Nanoparticles. Phys. Rev. Lett. 2007, 98, 026104.**

**22. Harutyunyan, H.; Volpe, G.; Quidant, R.; Novotny, L. Enhancing the Nonlinear Optical Response Using Multi-frequency Gold-Nanowire Antennas. Phys. Rev. Lett. 2012, 108, 217403.**

[**https://opg.optica.org/abstract.cfm?uri=oe-24-3-2360**](https://opg.optica.org/abstract.cfm?uri=oe-24-3-2360)

[**https://pubs.aip.org/aip/jap/article/115/8/083106/373503**](https://pubs.aip.org/aip/jap/article/115/8/083106/373503)

[**https://journals.aps.org/prb/abstract/10.1103/PhysRevB.93.035410**](https://journals.aps.org/prb/abstract/10.1103/PhysRevB.93.035410)

**]**

ВТ гарм <https://pubs.aip.org/aip/jcp/article/152/9/094706/1063125>

<https://journals.aps.org/prb/abstract/10.1103/PhysRevB.90.035412>

ТР гарм

Металлические наноструктуры привлекают к себе большое внимание благодаря своим уникальным характеристикам, связанным с возможностью возбуждения в них плазмонных резонансов на частоте падающего на наночастицу электромагнитного излучения.

Основной интерес к таким плазмонным наноструктурам обусловлен их уникальной способностью локализовать электромагнитные поля на нанометровых масштабах, существенно меньших дифракционного предела, что позволяет контролировать свойства света в размерах, намного меньших его длины волны.[A]

Благодаря плазмонным резонансам в наноструктурах происходит существенное увеличение локальной плотности энергии поля, что приводит к возможности проявления в них различного рода нелинейных эффектов, включающих multiphoton excited luminescence **[],** four-wave mixing [] и генерацию гармоник оптического излучения [вт гарм тр гарм].

В частности, явление генерации второй гармоники в наноструктурах, возможность возникновения которого в ограниченных металлических объектах была впервые обнаружена экспериментально и объяснена теоретически в работах [5, 6], является в настоящее время основой для широкого круга практических применений, включающего диагностику наноструктур [см эксп обзор] и оптических сред [7] ….

Важным фактором, благодаря которому наноструктуры и основанные на них метаматериалы могут служить эффективным инструментом для генерации второй гармоники, является возможность резонансного усиления поля не только основной гармоники оптического излучения, но и его второй гармоники при совпадении удвоенной частоты с собственной частотой другой плазмонной модой наноструктуры.

К настоящему моменту явление двойного плазмонного резонанса исследовалось фактически только для наноструктур обеспечивающих одновременное возбуждение двух различных поверхностных плазмонов наночастицы на основной и удвоенной гармониках падающего излучения.

Однако в общем случае в наноструктуре, помимо поверхностных плазмонов в наноструктурах могут существовать и объемные плазмоны [], которые как известно, могут сильно проявлять себя в случае, когда источник возбуждения коллективных электронных колебаний находится внутри наночастицы и характеризуется неоднородным распределением поля, что, например имеет место в задачах EELS спектроскопии при рассеянии пучков заряженных частиц наностркутурами.   
**ОБЪЕМНЫЕ ПЛАЗМОНЫ – что такое, пространственная дисперсия**

Подобная ситуация может возникнуть и в задачах генерации второй гармоники, когда обусловленные нелинейностью токи второй гармоники, возбуждаемые при резонансе поверхностного плазмона на основной гармонике могут возбуждать объемные плазмонные колебания в наночастице.

Данный эффект может иметь место, например в случае наноструктуры простейшей формы, металлической сферической наночастицы, однако к настоящему моменту двойные плазмонные резонансы такого типа фактически не были исследованы и являются предметом исследования данной работы.

В данной работе на основании гидродинамической модели [] исследуются нелинейные эффекты обусловленные возникновением резонансов объемных плазмонов на удвоенной частоте в условиях, когда частота основной гармоники наночастицы также испытывает резонанс и совпадает с частотой дипольного поверностного плазмона наночастицы (хорошо известный резонанс Ми). Работа организована следующим образом: вначале на основе уравнений гидродинамики с использованием метода последовательных 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 coupled resonances 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.

Рассмотрим произвольную металлическую наночастицу произвольной формы, находящуюся в заданном внешнем поле падающей электромагнитной волны. Как известно, Comprehensive description of the nonlinear carrier dynamics in a quasi-classical approach can be established considering a set of hydrodynamic-type equations treating the electron plasma as a compressible charge ﬂuid:[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 и (iii) электроны находятся внутри бесконечно глубокой потенциальной ямы, то есть будем пренебрегать возможностью возникновения spill-out effect [] на границах частицы. В месте с условиями применимости гидродинамичсекого подхода указанные выше условия несколько сужают область применимости рассматриваемой модели

**Уравнения**

Однако поскольку ранее двойные плазмонные резонансы, обсуждаемые здесь, фактически не исследовалисть такое упрощение модели представляется оправданным первым шагом на пути построения более точной модели. Таким образом, с учетом указанных предположений, нелинейная динамика коллективных электронных колебаний в наночастице подчиняется системе уравнений

Чччч

Где

ЧЧЧ p – давление электронов. Конкретный вид выражения для последний из перечисленных величин являлся предметом множества дискуссий и в настоящее время существует широкий спектр моделей описывающих эту величину. В рамках используемой здесь простой модели мы используем следующе феноменологическое уравнение состояния

Ччч

Отвечающее исследуемому здесь случаю быстрого адиабатического процесса и позволяющее получить известный закон дисперсии как для поверхностных, так и для объемных плазмонов.