**МИНИСТЕРСТВО НАУКИ И ВЫСШЕГО ОБРАЗОВАНИЯ**

**РОССИЙСКОЙ ФЕДЕРАЦИИ**

**Федеральное государственное автономное образовательное учреждение**

**высшего образования**

**«Национальный исследовательский**

**Нижегородский государственный университет им. Н.И. Лобачевского»**

Радиофизический факультет

Направление 03.03.03 «Радиофизика»

Профиль «Радиофизика и электроника»

ВЫПУСКНАЯ КВАЛИФИКАЦИОННАЯ РАБОТА

ДВОЙНЫЕ ПЛАЗМОННЫЕ РЕЗОНАНСЫ В МЕТАЛЛИЧЕСКИХ НАНОСТРУКТУРАХ

«К защите допущен»:

Зав. кафедрой электродинамики,   
профессор, д.ф.–м.н. \_\_\_\_\_\_\_\_\_\_ Кудрин А.В.

Научный руководитель,   
к.ф.–м.н. \_\_\_\_\_\_\_\_\_\_ Павличенко И.А.

Рецензент,   
доцент, к.ф.–м.н. \_\_\_\_\_\_\_\_\_\_ Петров Е.Ю.

Консультант по технике безопасности

доцент, к.ф.–м.н. \_\_\_\_\_\_\_\_\_\_ Клемина А.В.

Студент 4-го курса \_\_\_\_\_\_\_\_\_\_ Удалов М.Р.

Нижний Новгород

2024 год

ОГЛАВЛЕНИЕ

[Введение 3](#_Toc168757332)

[1. Постановка задачи 5](#_Toc168757333)

[1.1. Основная гармоника 6](#_Toc168757334)

[1.2. Вторая гармоника 9](#_Toc168757335)

[1.3. Мощность потерь 11](#_Toc168757336)

[2. Возбуждение двойных резонансов в плоском слое 13](#_Toc168757337)

[3. Двойные резонансы в сферической наночастице 25](#_Toc168757338)

[Заключение 36](#_Toc168757339)

[Список литературы 37](#_Toc168757340)

[Приложение 1. Основные правила и техника безопасности работы с компьютером 39](#_Toc168757341)

# Введение

Металлические наноструктуры привлекли к себе большое внимание благодаря своим уникальным характеристикам, связанным с возможностью возбуждения в них плазмонных резонансов на частоте падающего на наночастицу электромагнитного излучения [1, 2]. Благодаря плазмонным резонансам может генерироваться сильное электрическое поле, из-за которого могут проявляться различные нелинейные эффекты [3]. Один из таких нелинейных эффектов, это генерация второй гармоники [4], возможность возникновения которого в ограниченных металлических объектах была впервые обнаружена экспериментально и объяснена теоретически в работах [5, 6]. Благодаря этому эффекту наночастицы могут служить источниками излучения для нужд диагностики оптических сред и спектроскопии [7, 8]. Как правило, этот эффект слаб (как и почти все нелинейные оптические явления) и для его проявления требуется высокая интенсивность падающего на наночастицу излучения. Один из способов повысить эффективность второй гармоники – добиться случая, когда вторая гармоника тоже будет находиться в резонансе. Явление двойного плазмонного резонанса, когда и основная и удвоенная гармоники излучения находятся в резонансе с двумя различными плазмонами наноструктуры, исследовалось в достаточно большом числе научных исследований (см. например, [9-11]). Исследования проводились для частиц, обладающих достаточно сложной формой, однако оказывается, что двойной резонанс возможен и в более простых металлических структурах, таких как плоский слой или сфера, при условии, что первая гармоника находится в резонансе с поверхностным плазмоном, а вторая гармоника в резонансе с одним из объёмных плазмонов. Двойные резонансы для таких структур ранее фактически не исследовались и являются предметом исследования данной работы.

Работа организована следующим образом: в первой (после Введения) главе описана постановка задачи о возбуждении коллективных электронных колебаний в металлической наночастице малых размеров и сформулированы две краевые задачи, определяющие структуры колебаний на первой и второй гармонике. В заключительной части первой главы получено выражение для средней за период колебаний мощности потерь в наночастице. Во второй и третьей главах полученные в первой главе результаты используются для расчета частотных зависимостей мощности потерь в плоском металлическом слое и металлическом шаре. В Заключении сформулированы основные результаты работы.

# 1. Постановка задачи

В качестве первого шага проводимого исследования двойных плазмонных резонансов в металлических наночастицах, получим в рамках метода последовательных приближений уравнения, описывающие коллективные электронные колебания на основной и удвоенной гармонике поля. Для описания движения электронов проводимости в частице будем использовать гидродинамичекий подход. Также будем предполагать, что для описания основной и удвоенной гармоник колебаний применимо квазистатичекое приближение. Используемые здесь приближения применимы, когда размеры частицы велики по сравнению с характерным масштабом нелокальности поляризуемости вырожденной плазмы металла, но малы по сравнению с длиной волны поля второй гармоники. В дополнение к этому далее предполагается, что в отсутствие внешнего поля электроны, как и ионы, распределены равномерно по объему частицы с плотностью . Фактически используемая нами модель не учитывает размытия профиля электронной плотности близ границы металла. Однако поскольку ранее двойные плазмонные резонансы, которым посвящена данная работа, фактически не исследовались, такое упрощение модели представляется оправданным.

Рассмотрим металлическую наночастицу произвольной формы, помещенную в заданное однородное внешне поле , и находящуюся в среде с диэлектрической проницаемостью . Будем считать, что внешнее поле меняется на частоте . Запишем уравнения гидродинамики (уравнение непрерывности и уравнение Эйлера) для электронов в вырожденной плазме металла.

В уравнении (1.1) – скорость электронов, – возмущённая концентрация электронов, и *m* – заряд и масса электрона, – эффективная частота соударений электронов. Давление вырожденного электронного газа , связанно в случае быстрых осцилляторных процессов с плотностью плазмы уравнением адиабаты , с показателем [12], где   
 – давление в однородном вырожденном электронном газе с плотностью , – скорость Ферми. Напряженность электрического поля , связана с плотностями электронов и ионов уравнением

где – диэлектрическая проницаемость ионного остова наночастицы. В рамках используемого квазистатического приближения будем считать, что поле потенциально . Для описания коллективных электронных колебаний получим из исходных уравнений (1.1), (1.2) дифференциальные уравнения, связывающие комплексные амплитуды потенциала и плотности заряда основной и удвоенной гармоник.

## 1.1. Основная гармоника

Вначале найдем уравнения для основной гармоники колебаний. Для этого необходимо линеаризовать исходные уравнения (1.1), (1.2). Представим концентрацию электронов в виде суммы ее невозмущенного значения (постоянной величины и малого возмущения (характеризуемого комплексной амплитудой и меняющегося на частоте внешнего поля):

В аналогичном виде представим скорость электронов и напряженность поля :

Постоянные составляющие в разложениях (1.4), (1.5) отсутствуют, поскольку без возмущения (роль которого играет внешнее поле) электроны неподвижны и (в рамках рассматриваемой модели) невозмущенные плотности электронов и ионов однородны и равны. Линеаризованные относительно малых возмущений , , ) уравнения гидродинамики будут иметь следующий вид:

Из соотношений (1.6)–(1.8) получим уравнение для комплексной амплитуды возмущений электронной плотности. При этом электронная плотность связана с потенциалом уравнением Пуассона. Тогда можно записать следующую систему уравнений:

где – плазменное волновое число,   
, – плазменная частота, – комплексная амплитуда плотности заряда, – потенциал поля основной  
гармоники ().

Уравнения (1.8), (1.9) должны быть дополнены граничными условиями для неизвестных функций и на поверхности наночастицы *S*. Первые два граничных условия вытекают непосредственно из уравнений Максвелла. Согласно им, граничные условия для поля будут иметь следующий вид. Потенциал на границе непрерывен

где – потенциал поля первой гармоники вне частицы, удовлетворяющий уравнению Лапласа , или тангенциальная компонента напряжённости непрерывна . Нормальная производная потенциала может испытывать скачек, величина которого описывается выражением

или нормальная компонента индукции поля непрерывна . Появление скачка производной (т.е. фактически скачка нормальной компоненты поля) связано с возникновением на границе раздела между двумя диэлектриками с проницаемостями и индуцированного поверхностного заряда. Система уравнений (1.8), (1.9) имеет фактически четвертый порядок, обычных (для задач квазистатики) граничных условий (1.10), (1.11) оказывается недостаточно для однозначного определения плотности заряда и потенциала. В дополнение к условиям (1.10), (1.11) будем считать, что электроны отражаются от границы зеркально, поэтому нормальная компонента потока должна быть равна нулю на границе, и соответственно нормальная компонента вектора скорости также должна быть равна нулю. Как можно увидеть из уравнения (1.7) поле скоростей оказывается потенциальным:

где потенциал (который далее будем называть потенциалом скорости) равен

Из требования равенства нулю нормальной компоненты скорости на границе вытекает последнее граничное условие

где имеет смысл характерного радиуса нелокальности.

Уравнения (1.8), (1.9) вместе с граничными условиями (1.10), (1.11), (1.14) образуют краевую задачу, решение которой позволяет определить структуру поля и плотности заряда основной гармоники колебаний.

## 1.2. Вторая гармоника

Далее, в рамках метода последовательных приближений, уточним линейное приближение (1.5) следующей гармоникой на частоте

в которых амплитуды возмущения на основной частоте считаем известными функциями координат, полученными из решения краевой задачи, сформулированной выше. Уравнения для комплексных амплитуд вторых гармоник возмущения, вытекающие из уравнений гидродинамики, удобно записать в виде:

Эта система уравнений отличается от аналогичной системы уравнений для основной гармоники (1.6), (1.7) наличием дополнительных слагаемых и , определяемых соотношениями

Эти слагаемые имеют второй порядок малости и играют роль источников колебаний на удвоенной частоте. Появление этих слагаемых обусловлено нелинейностью исходных уравнений: возникает из-за нелинейности связи между скоростью, концентрацией и плотностью тока (). Два слагаемых в выражении для возникают из-за нелинейности уравнения состояния и нелинейности, в выражении для субстанциональной производной (член в уравнении (1.2)), соответственно. Величина фактически имеет смысл дополнительной силы, действующей на электроны в металле. Из уравнения (1.19) с помощью уравнения непрерывности можно получить уравнение для плотности заряда , которое будет иметь следующий вид:

Граничные условия для второй гармоники колебаний, вытекающие фактически из уравнений Максвелла (1.3), сохранят тот же вид, что и для основной гармоники

где – потенциал поля второй гармоники вне частицы, удовлетворяющий уравнению Лапласа . Условие зеркального отражения электронов на второй гармонике колебаний немного видоизменится. Поле скоростей второй гармоники по-прежнему останется потенциальным,

но в выражении для потенциала скорости появится дополнительное нелинейное слагаемое , описывающее сторонний источник:

Отсюда третье граничное условие

## 1.3. Мощность потерь

В качестве величины, характеризующей эффективность возбуждения колебаний на основной и удвоенной гармоники, рассчитаем полную мощность потерь (то есть фактически энергию, теряемую во всем объеме наночастицы в единицу времени). Потери энергии обусловлены наличием в уравнении (1.2) диссипативной силы, с плотностью . 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*, можно получить значение полных потерь:

Как было показано ранее, скорости и потенциальны. Используя известное дифференциальное соотношение для дивергенции произведения векторного и скалярного поля () можно показать, что

.

Согласно теореме Остроградского-Гаусса первое слагаемое в предыдущем выражении будет равно нулю в силу граничных условий, т.к. нормальная компонента потока на границе равна нулю. Во втором слагаемом дивергенция потока может быть выражена через плотность заряда с помощью уравнения непрерывности. Таким образом, мощность потерь может быть записана в виде более удобном для вычислений

поскольку в подынтегральные выражения входят только скалярные величины.

# 2. Возбуждение двойных резонансов в плоском слое

Вначале исследуем двойные плазмонные резонансы на простой одномерной модели [13, 14]. Рассмотрим плоский конденсатор, в который помещён однородный плазменный слой толщиной , между границей слоя и одной из обкладок имеется зазор толщиной (см. рисунок 1). На конденсатор подается переменное напряжение с фиксированной частотой и амплитудой, которое создает переменное поле в конденсаторе (ось направлена перпендикулярно обкладкам в сторону вакуумного зазора). Размеры боковых обкладок конденсатора будем считать достаточно большими по сравнению с расстоянием между ними. Это позволяет рассматривать задачу как одномерную. Диэлектрическую проницаемость ионного остова будем считать равной единице.

|  |
| --- |
|  |
| Рис. 1. Геометрия задачи |

Уравнение для комплексной амплитуды основной гармоники возмущений электронной плотности (1.8) в случае одномерной задачи будет иметь вид:

Исходя из симметрии задачи и условия равенства нулю полного заряда, решением уравнения (2.1) будет являться функция вида

где – постоянная, определяемая из граничных условий. Запишем связь комплексных амплитуд единственной компоненты напряженности поля в плазме и плотности заряда ,

и (с учетом выражения (2.2)), будем искать поле в виде суммы гармонической симметричной функции ( – постоянная величина, определяемая из граничных условий) и не зависящего от координаты *x* слагаемого :

Из граничных условий для основной гармоники колебаний (1.10), (1.11), (1.14) и уравнений (2.3), (2.4) вытекает следующее граничное условие, связывающее величину с напряженностью поля в вакуумном промежутке

в котором величина имеет смысл диэлектрической проницаемости холодной изотропной плазмы. С учетом условия непрерывности тангенциальной компоненты напряжённости (1.10), которое в рассматриваемом случае приобретает вид

получаем связь между составляющими поля в плазме и полем в зазоре

Поскольку напряжение между пластинами задано, и имеет амплитуду , из условия

представляется возможным найти значение поля

где . Как можно увидеть из выражения (2.10), в рассматриваемой системе возможны резонансы, обусловленные совпадением частоты внешнего напряжения с частотами собственных плазмонных колебаний. Положение резонансных максимумов определяется близостью к нулю знаменателя в уравнении (2.10). В общем случае в системе присутствует один резонанс на частоте , лежащей ниже плазменной (поверхностный плазмон) и серия резонансов на частотах (), превышающих плазменную частоту (объемные плазмоны) [13, 14]. Последние из указанных типов колебаний при характерных (для металлов, применяемых в плазмонике) значениях параметра потерь оказываются фактически полностью подавленными. На рисунке 2 представлены зависимости напряженности электрического поля в зазоре, от частоты при различных соотношениях между толщинами слоя *L* и зазора и характерным масштабом нелокальности . Из приведённых графиков видно, что резонансная частота и высота основного резонансного максимума может изменяться при изменении соотношений между этими пространственными масштабами. Таким образом, меняя толщину зазора, можно добиться возникновения двойных резонансов, то есть совпадения удвоенной частоты основного резонанса с частотой одного из объёмных плазмонов на частотах выше плазменной. Значения резонансных частот и структура поля этих плазмонов отличается от описываемых уравнениями (2.7), (2.8), (2.10), и для их расчета необходимо прибегнуть к решению краевой задачи уравнениями (1.22), (1.23) вместе с граничными условиями (1.24), (1.25), (1.28).

|  |
| --- |
| 3  2  1 |
| Рис. 2. Частотные зависимости поля в вакуумном зазоре при и  (1) , (2) , (3) |

В одномерном случае записанное ранее уравнение для электронной плотности на второй гармонике примет вид

С учетом полученного выше решения для основной гармоники и выражений для источников колебаний на второй гармонике (1.20), (1.21) в случае малых потерь () уравнение (2.11) может быть записано в виде

где *, .* Здесь также введён параметр,

( – поле в конденсаторе в отсутствие плазмы) который будем называть коэффициентом нелинейности. Коэффициент показывает, насколько сильно поле первой гармоники связано с полем второй гармоники . Как можно увидеть, амплитуда колебаний на второй гармонике прямо пропорционально возрастает при увеличении , однако в реальных условиях слишком больших значениях этого параметра возможно разрушение металлического слоя. Соответствующее пороговое значение можно оценить по порядку величины, обратившись к результатам исследований по абляции наноструктур и тонких пленок лазерными импульсами [15]. В соответствие с ними, пороговая интенсивность импульса, при которой может произойти разрушение облучаемого объекта, составляет порядка . Интенсивность связана с напряженностью электрического поля соотношением . Входящая в параметр нелинейности скорость по порядку величины равна скорости Ферми (типичное значение для металлов ); характерную толщину плазменного слоя положим в проводимых оценках равной 10 нм. Подставляя в параметр максимальное численные значения указанных выше величин, получим оценку для максимального значения коэффициента нелинейности

При отыскании структуры колебаний на второй гармонике оказывается более удобным перейти от уравнения для плотности заряда (2.12) к уравнению для комплексной амплитуды поля , поскольку в рассматриваемом одномерном случае поле второй гармоники вне плазмы равно нулю (в силу нейтральности плазмы) и непрерывно на ее границах

Величины и связаны уравнением Максвелла . Подставив это соотношение в выражение и взяв определённый интеграл от левой обкладки конденсатора до произвольной точки в плазме получим уравнение

Следуя обычной процедуре, будем искать решение уравнения (2.14) в виде суммы общего однородного и частного неоднородного решений.

Частное неоднородное решение будем искать в виде

в котором константы и могут быть определены непосредственно из уравнения (2.14). Так как правая часть уравнения (2.14) представляет собой нечетную функцию, и в силу условий (2.13) общее однородное решение должно иметь вид

где постоянная определяется граничными условиями (2.13). Таким образом получаем следующее выражение для поля второй гармоники:

где введено обозначение . Из этого выражения видно, что поле второй гармоники имеет особенности при условии . Это условие фактически является условием резонанса для «четных» плазмонных мод (в которых объемная плотность заряда распределена симметрично относительно центра слоя) и позволяет определить значение их резонансных частот

Таким образом, при выполнении условий возможна ситуация, когда и основная и вторая гармоника колебаний находится в резонансе.

Для того, чтобы продемонстрировать явление двойного резонанса рассчитаем среднюю по периоду мощности потерь, приходящуюся на единицу площади плазменного слоя . Для удобства дальнейшего изложения эту величину удобно представить в виде суммы двух составляющих, и , описывающих вклад в потери, вносимые основной и второй гармоникой колебаний, соответственно:

.

На основании общего выражения (1.30), и описанных выше в этой главе решений краевых задач для первой и второй гармоник имеем

где

Для удобства и более компактной записи введем функции :

а также обозначения

Тогда:

Далее на рисунках 3–5 представлена частотная зависимость мощности потерь. На нижних осях обозначены положения частот резонансов и , черным и красным цветом соответственно. Из графиков, изображенных на рисунке 3, видно, что объемные резонансы слабы по сравнению с поверхностным резонансом, однако даже при неточном совпадении частот (условие ), наблюдается проявление дополнительных резонансов.

|  |  |
| --- | --- |
|  |  |
| Рис. 3. Зависимости мощности потерь от частоты при  в линейном и логарифмическом масштабах | |

Далее представлены рисунки 4 (а, б), иллюстрирующие влияние отношения толщины слоя плазмы к толщине зазора, на положение резонансного максимума. Также, при увеличении коэффициента нелинейности увеличивается вклад вторых гармоник в потери , и резонансы проявляются сильнее. При увеличении отношения толщины слоя плазмы к толщине зазора, положение резонанса сдвигается.

|  |
| --- |
|  |
|  |
| Рис. 4. Зависимости мощности потерь от частоты при  (а) , (б) |

На следующих рисунках 5 (а, б) продемонстрировано влияние таких параметров как коэффициент затухания и характерный радиус нелокальности на вид кривой потерь. При уменьшении коэффициента затухания увеличивается вклад вторых гармоник, увеличивается максимальное значение потерь При увеличении , увеличиваются потери, сдвигается положение основного резонанса.

|  |  |
| --- | --- |
|  |  |
| Рис. 5. Зависимости мощности потерь от частоты при,  (а) , (б) | |

Из приведённых графиков становится видно, что есть случаи, когда потери на второй гармонике могут сильно проявляться и влиять на общий вид кривой мощности потерь. Соответственно в некоторых моделях может быть важным учитывание эффекта двойных резонансов.

Для оценки влияния двойных резонансов можно строить не частотную зависимость потерь, а максимальное значение потерь от толщины зазора. Ниже на рисунках 6, 7 представлены графики зависимости безразмерного максимального значения потерь:

Для потерь на первой гармонике (черные кривые) и общих потерь (красным кривые) от отношения толщины слоя плазмы к толщине зазора , для двух разных значений эффективных частот соударений .

|  |
| --- |
|  |
| Рис. 6. Зависимости максимального значения мощности потерь от при при разном параметре затухания |

Из графика на рисунке 6 видно, что при изменении толщины зазора меняется положение основного резонанса, и при точном совпадении с одним из плазмонных резонансов, наблюдаются максимумы потерь. Далее приведён рисунок 7, показывающий влияние параметра на области выраженных двойных резонансов.

|  |
| --- |
|  |
| Рис. 7. Зависимости максимального значения мощности потерь от при   при разном параметре затухания . |

Из рисунков 6, 7 видно, как сдвигается область резонансов при уменьшении характерного радиуса нелокальности . Как можно увидеть из этих рисунков, увеличение эффективной частоты соударений приводит к заметному уменьшению вклада второй гармоники. Однако для типичных для металлов значений , этот эффект будет проявляться.

# 3. Двойные резонансы в сферической наночастице

Рассмотрим плазменный шар радиуса окруженный средой с диэлектрической проницаемостью и помещенный во внешнее переменное поле  с фиксированной частотой и амплитудой.

|  |
| --- |
|  |
| Рис 8. Сферическая наночастица в однородном гармоническом поле |

В линейном случае задачи о коллективных электронных колебаниях в плазменном шаре хорошо известно, см. например, [14, 16, 17]. В силу граничных условий потенциал и плотность заряда первой гармоники должны иметь такую же угловую зависимость, что и у потенциала внешнего поля (угол отсчитывается от направления поля , — расстояние от центра шара). В частности, решение уравнения для выражается через сферические функции Бесселя и полиномы Лежандра первого порядка

где – произвольная константа, определяющая максимальную амплитуду колебаний. Решение неоднородного уравнения для потенциала (1.9) представляет собой сумму общего решения однородного уравнения и частного решения неоднородного уравнения

В линейном приближении в случае однородного вешнего поля потенциал вне шара принимает вид:

В формулах (3.3) и (3.5) постоянные и имеют смысл однородной составляющей напряженности поля и дипольного момента шара, соответственно. Поскольку вид выражений для плотности заряда и потенциалов внутри и вне плазмы известны, мы можем найти произвольные постоянные в этих выражениях, из граничных условий (1.10), (1.11) и (1.14) записанных на поверхности шара при . Ниже приведены полученные таким образом выражения для величин, необходимых для дальнейшего расчета поля второй гармоники

В предыдущих выражениях введены обозначения , , Последнее из этих выражений имеет смысл диэлектрической проницаемости металла с диэлектрической проницаемостью ионного остова в отсутствие пространственной дисперсии. Условием резонанса для основной гармоники является условие равенства нулю знаменателя константы в выражении для :

.

Подобно рассмотренному выше случаю колебаний плазменного слоя при выполнении условия это уравнение позволяет определить резонансную частоту поверхностного плазмона, одно решение () в области закритической плазмы (при ) и множество резонансных частот () объёмных плазмонов.

Для второй гармоники можно получить вид функций для сторонних источников:

Вводя дополнительные обозначения

можно в явном виде указать зависимость и от координат:

Коэффициент нелинейности введём аналогично, как и вводили раннее:

Для дальнейшего решения этой задачи методом разделения переменных, необходимо представить правую часть уравнения (1.22) (сторонние источники) в виде произведений некоторых радиальных функций на полиномы Лежандра . Через основное тригонометрическое тождество можно перейти к квадрату косинуса в правой части, и далее использовать следующее соотношение:

По определению, полином Лежандра нулевого порядка равен единице. Тогда, сторонние источнике можно представить в виде:

где радиальные функции при соответствующих полиномах Лежандра. Представление сторонних источников в виде (), (), явно показывает наличие монопольных () и квадрупольных () источников. А значит и искомые функции и можно представить в аналогичном виде:

где неизвестные радиальные функции. Тогда от системы уравнений (1.22) переходим к следующей:

где введён оператор

Граничное условие непроницаемости границы (1.28) примет вид:

Потенциал снаружи для квадрупольных колебаний известен, и имеет вид Тогда из граничных условий для потенциалов (1.24) и (1.25) получим:

Для монопольных колебаний потенциал снаружи равен нулю, тогда:

Решение уравнений (), (3.20) для радиальных функций потенциала и возмущения электронной плотности было найдено численными методами решения дифференциальных уравнений, с помощью метода Галеркина и метода матричной прогонки. Мощность потерь можно рассчитать по найденным радиальным функциям следующим образом:

Обозначим далее через

мощность потерь на первой гармонике, и через  и мощности потерь монопольной и квадрупольной составляющей второй гармоники соответственно.

Если рассчитать потери на первой гармонике и построить для них зависимость мощности потерь, как это сделано на рисунке 9, можно увидеть, что потери энергии при объёмных резонансах (при частотах выше плазменной), намного меньше потерь на основном резонансе.

|  |
| --- |
|  |
| Рис. 9. Зависимость мощности потерь (без учета нелинейности) от частоты при |

На следующем графике, изображенном на рисунке 10, построены зависимости мощности потерь от частоты, видно проявление дополнительного резонанса из-за квадрупольных колебаний. Синей кривой обозначена мощность потерь дипольных колебаний, зеленым пунктиром — потери монопольных колебаний, красным пунктиром — квадрупольных колебаний, черной кривой суммарные потери. Далее, на рисунках 11, 12, на нижней панели синими, красными и зелеными вертикальными линиями обозначены положения частот , и , соответственно.

|  |
| --- |
|  |
| Рис. 10. Зависимость мощности потерь от частоты при |

Далее на рисунке 11 (а) представлен график зависимости мощности потерь от частоты, при близости частот первого квадрупольного и дипольного резонанса. При этом не проявляются дополнительные резонансы, и увеличивается суммарная мощность потерь. На рисунке 11 (б) показан случай близости монопольного и дипольного резонанса. Стоит отметить влияние монопольных резонансов, которые как правило себя не проявляют (потенциал монополя снаружи равен нулю). Так же, в некоторых случаях (как показано на рисунке 11 (б)) может происходить уширение линии потерь.

|  |  |
| --- | --- |
| **а)** | **б)** |
| Рис. 11. Зависимость мощности потерь от частоты при  (а) , (б) | |

Далее на рисунках 12 (а, б) проиллюстрирована плотность потерь при частотах соответствующих максимумам потерь на рисунках 11 (а, б). В отличие от линейного случая (дипольных колебаний), когда плотность мощности потерь сосредоточена вблизи «полюсов» наночастицы   
() и фактически равна нулю в её центре, с учетом нелинейности плотность потерь становится заметно отличной от нуля и внутри объёма сферы. Пространственное распределение плотности мощности потерь в центральной области наночастицы отвечает структуре поля объемного мультипольного резонанса, возбуждаемого на второй гармонике.

|  |  |
| --- | --- |
|  |  |
| Рис. 12. Распределение плотности мощности потерь при частотах, отвечающих максимуму суммарных потерь, на рисунках 11 (а) (слева) и 11 (б) (справа) | |

Аналогично с предыдущей задачей о слое плазмы, для оценки влияния двойных резонансов на потери энергии, можно построить зависимости максимального значения потерь для потерь на первой гармонике (синий пунктир) и общих потерь (черные кривые). Далее на рисунках 13, 14 на нижних панелях вертикальными линиями обозначены диэлектрические проницаемости, на которых совпадают частота объемного резонанса на второй гармонике, и удвоенная частота поверхностного резонанса на основной гармонике. Красными вертикальными линиями обозначены совпадения квадрупольных резонансов с удвоенной частотой основного дипольного резонанса, зелеными линиями обозначены совпадения для монопольных резонансов и основного дипольного. Числом обозначен номер соответствующего объемного резонанса, с которым при удвоении частоты совпадает дипольный резонанс.

|  |
| --- |
|  |
| Рис. 13. Зависимости максимального значения потерь от при, |

Видно, что при малом характерном радиусе нелокальности объемные резонансы квадрупольного и монопольного типа практически совпадают. Ситуация меняется при увеличении радиуса нелокальности, что показано на следующих рисунках 14 (а, б).

|  |  |
| --- | --- |
|  |  |
| Рис. 14 Зависимости максимального значения потерь от при (а) при ; (б) при | |

При увеличении радиуса нелокальности стали различимы отдельные резонансы монопольного и квадрупольного типа. При этом перестают проявляться резонансы более высоких порядков. В свою очередь, при увеличении диэлектрической проницаемости ионного остова, также перестают проявляться более высокие резонансы, и сдвигается область резонансов.

Далее на рисунке 15 представлены расчеты максимального по частоте значения мощности потерь от диэлектрической проницаемости для алюминиевых () [18] сферических наночастиц, с радиусом 2 и 3 нанометра, при интенсивности падающего излучения равной . Расчеты показывают, что для реальных наночастиц проявляются двойные резонансы, и вносят существенный вклад в потери энергии. Важно отметить то, что данный эффект может проявляться при относительно низкой интенсивности.

|  |
| --- |
|  |
| Рис. 15. Зависимость максимального по частоте значения мощности потерь от диэлектрической проницаемости окружающей среды, для алюминиевых наночастиц различного радиуса при интенсивности лазерного импульса |

# Заключение

В ходе выполнения данной работы были получены краевые задачи, определяющие структуры поля и плотности заряда на основной и удвоенной гармониках колебаний для наночастицы произвольной формы. Была получена формула для мощности потерь от частоты на каждой гармонике. На основании решения этих двух краевых задач было исследовано возбуждение двойных резонансов для двух геометрий: одномерная задача о слое однородной вырожденной плазмы, помещенной в конденсатор, и задача о сферической металлической наночастице, находящейся под воздействием переменного внешнего поля.

В результате решения краевых задач для плоского слоя плазмы, оказалось, что, меняя отношение длины слоя плазмы к длине конденсатора, можно получить случаи, когда объемные резонансы на удвоенной частоте оказывают существенный вклад в кривую потерь. Это происходит в случае, когда удвоенная резонансная частота поверхностного плазмона (на первой гармонике) и объёмного плазмона (на второй гармонике), совпадают. При неточном совпадении резонансных частот, на кривой потерь может происходить появление дополнительных максимумов.

В сферической наночастице происходило возбуждение разных типов колебаний на удвоенной гармонике: монопольных и квадрупольных. В зависимости от диэлектрической проницаемости среды, вклад в потери могут вносить колебания, как и монопольных типов, так и квадрупольных типов. Показательным результатом является влияние на мощность потерь монопольных типов колебаний, которые как правило себя никак не проявляют. Больший вклад в потери будет вносить тот тип колебаний, чья резонансная частота находится ближе к удвоенной частоте первой гармоники.

# Список литературы

1. Климов В.В. Наноплазмоника. — Москва: Физматлит, 2009.
2. Maier S. Plasmonics: fundamentals and applications. — New York: Springer Science & Business Media, 2007.
3. Free-electron optical nonlinearities in Plasmonic Nanostructures: A Review of the Hydrodynamic Description / A. V. Krasavin, A. V. Zayats, P. Ginzburg // Laser & Photonics Reviews — 2017 — Rev. 2018, 12 — P. 1700082.
4. Optical second harmonic generation in plasmonic nanostructures: from fundamental principles to advanced applications / J. Butet, P. Brevet, J. Martin // American Chemical Society — 2015 — Vol. 9, 11 — P. 10545–10562.
5. Generation of optical harmonics / P. A. Franken, A. E. Hill, C. W. Peters, G. Weinreich // Physical Review Letters — 1961 — Vol. 7 — P. 118−119.
6. Light waves at the boundary of nonlinear media / N. Bloembergen, P. S. Pershan // American Physical Society — 1962 — Rev. 128 — P. 606.
7. Sensing with multipolar second harmonic generation from spherical metallic nanoparticles / J. Butet, I. Russier-Antoine, C. Jonin // American Chemical Society — 2012 — Vol. 12, 3 — P. 1697–1701.
8. Kenneth B., Second harmonic spectroscopy of aqueous nano- and microparticle interfaces // American Chemical Society — 2006 — Vol. 106, 4 — P. 1462−1477.
9. Enhanced second-harmonic generation from double resonant plasmonic antennae / K. Thyagarajan, S. Rivier, A. Lovera // Optics Express — 2012 — Vol. 20, No. 12. — P. 12860−12864.
10. Second-harmonic generation in metallic nanoparticles: clarification of the role of the surface / C. Ciracì, E. Poutrina, M. Scalora // Physical Review B — 2012 — Rev. 86 — P. 115451.
11. Plasmon-enhanced second harmonic generation of metal nanostructures / C. Zhang, J. Zhang, S. Ding // Nanoscale — 2024 — Vol. 16 — P. 5960–5975.
12. Haas F. Quantum plasmas: An hydrodynamic approach. — New York: Springer Science & Business Media, 2011. — Vol. 65.
13. Дипольные резонансы ионизированного кластера / А.М. Быстров, В.Б. Гильденбург // ЖЭТФ — 2005 — Т. 127 — С. 478.
14. Resonances of surface and volume plasmons in atomic clusters / V. B. Gildenburg, V. A. Kostin, I. A. Pavlichenko // Physics of Plasmas — 2011 — Vol. 18 — P. 092101.
15. Pustovalov V. Investigation of threshold laser intensities for melting and evaporation of spherical and spheroidal nanoparticles in media by short laser pulses // Chemical Physics Letters — 2006 — Vol. 421, Issues 1–3 — P. 142–147.
16. Гильденбург В.Б., Кондратьев И.Г. Дифракция электромагнитных волн на ограниченной плазме при наличии пространственной дисперсии // Радиотехника и электроника. — 1965 — Т. 10. — С. 658–664.
17. Ruppin R. Optical properties of small metal spheres // Physical Review B. — 1975 — Vol. 11, No. 8. — P. 2871–2876.
18. Rakic D. Algorithm for the determination of intrinsic optical constants of metal films: application to aluminum. // Applied Optics — 1995 —Vol. 34, No. 22. — P. 4755− 4767.

# Приложение 1. Основные правила и техника безопасности работы с компьютером

Существенная часть проведенного исследования была связана с работой на персональном компьютере. Требования, предъявляемые к оборудованию рабочего места, и правила работы на ПК (см. далее) были соблюдены.

* Не работайте с компьютером при наличии внешних повреждений корпуса или изоляции силовых кабелей. В этом случае требуется замена кабелей или обращение в сервисный центр.
* Не кладите на корпус системного блока и не храните на нем разные предметы, особенно тяжелые, т.к. в этом случае может возникнуть вибрация, которая может вызвать нарушения работы компьютера.
* Не рекомендуется включать компьютер в розетки без заземления. Розетки и вилки должны быть цельными, без повреждений.
* Не включайте компьютер в помещении с высокой влажностью.
* Не оставляйте работающий ПК без присмотра длительное время.
* Провода и силовые кабеля компьютера должны быть расположены так, чтобы исключить возможность наступить на них или поставить что-то тяжелое.
* Нельзя работать с компьютером при открытом корпусе системного блока.

Нормативная база: СанПиН 2.2.2/2.4.1340-03 от 30.05.2003. Санитарно-эпидемиологические правила и нормативы СанПиН 2.2.2/2.4.1340-03. Гигиенические требования к персональным электронно-вычислительным машинам и организации работы.