

ГЕНЕРАЦІЯ МОМЕНТУ ІМПУЛЬСУ В АСИМЕТРИЧНІЙ МЕТАЛЕВІЙ НАНОЧАСТИНЦІ ПІД ДІЄЮ УЛЬТРАКОРОТКОГО ЛАЗЕРНОГО ІМПУЛЬСУ

П. М. Томчук¹, М. І. Григорчук²

¹Інститут фізики НАН України, пр. Науки, 46, Київ, 03680

²Інститут теоретичної фізики ім. М. М. Боголюбова НАН України
вул. Метрологічна, 14-б, Київ, 03680

(Отримано 1 березня 2010 р.; в остаточному вигляді — 26 липня 2010 р.)

У роботі побудовано теорію генерації в асиметричній металевій наночастинці механічного моменту під дією ультракороткого лазерного імпульсу. Враховано, що для розміру частинки, меншого від довжини вільного пробігу електрона, оптична провідність стає тензорною величиною. Її діагональні елементи визначають напівширини плазмонних резонансів. Отримано вирази для компонент тензора поляризованості сфероїдальної металеві наночастинки.

Ключові слова: ультракороткі лазерні імпульси, механічний момент імпульсу, металеві наночастинки, несферичні частинки.

PACS number(s): 78.67.Bf, 42.50.Md, 32.80.Lg

I. ВСТУП

Металеві наночастинки (МН) та їхні ансамблі завдяки своїм унікальним властивостям [1,2] широко застосовують у науці й техніці, починаючи від нанесення МН на поверхні з метою зміни їх відбивальної здатності [3] до використання МН у біосенсоріці [4] та геноміці [5] для візуалізації клітинних структур і закінчуючи використанням у медицині для лікування раку [6]. Про останні досягнення у вивченні й застосуванні цих унікальних об'єктів читач може довідатися з оглядів [7,8] і цитованої там літератури.

Використання ультракоротких лазерних імпульсів для дослідження фізичних властивостей МН відкриває нові можливості. По-перше, коротка тривалість імпульсу (до 10^{-15} с) дає змогу вивчати швидко динаміку електронних процесів у таких системах [8]. По-друге, широкий діапазон потужностей лазерних імпульсів дозволяє досліджувати як лінійні, так і нелінійні оптичні явища в МН і їх ансамблях [9,10]. Ще одна корисна особливість ультракоротких лазерних імпульсів у застосуванні до вивчення МН полягає у високій чутливості результатів дії таких імпульсів до форми МН [11]. Справа в тому, що основний внесок у поглинання світла МН дають плазмонні резонанси. Якщо частинка сферично симетрична, то для неї характерний один плазмонний резонанс, а якщо форма частинки еліпсоїдальна, то таких резонансів — три. При цьому для асиметричної частинки не тільки плазмонні частоти, але і їхні напівширини можуть залежати від форми. Для асиметричних частинок, менших за розміром (хоча б в одному напрямку) від довжини вільного пробігу електрона, високочастотна (оптична) провідність стає тензорною величиною [12]. Діагональні елементи цього тензора визначають напівширини плазмонних резонансів. Тому зі зміною форми частинки (при збереженні об'єму) змінюється як положення плазмонних резонансів на шкалі частот, так і їхні напівширини. При дії на МН ультракоротких

лазерних імпульсів, залежно від їх поляризації, в поглинання можуть давати внесок один, два або всі три плазмонні резонанси. Появляється також залежність поглинання МН від форми лазерного імпульсу (при фіксованій його енергії).

У результаті взаємодії ультракороткого лазерного імпульсу з МН виникають три пов'язані між собою ефекти: частинка поглинає енергію лазерного імпульсу, набуває від нього механічного моменту, а якщо вона асиметрична, то дістає також і момент механічного імпульсу. У цій роботі основну увагу буде приділено дослідженню особливостей з'генерованого в МН моменту імпульсу залежно від форми МН. А що всі три названі вище ефекти тісно пов'язані між собою, то ми коротко зупинимося також на переданому частинці механічному імпульсі й поглинутій частинкою енергії. Особливості поглинання енергії МН при дії на них ультракоротких лазерних імпульсів ми дослідили в [11]. Передачу імпульсу МН при дії на них монохроматичної хвилі ми вивчали в [13]. Що стосується генерації моменту механічного імпульсу в МН під дією ультракороткого лазерного імпульсу, то сьогодні нам такі роботи невідомі. Проте цей ефект порівняно просто дослідити експериментально. Якщо МН є достатньо асиметричною, то при внесенні її, наприклад, у рідкий кристал, вона буде орієнтована певним чином деформаційним полем директора. При опроміненні такої орієнтованої МН поляризованим лазерним імпульсом набутий момент механічного імпульсу викликати лібраційні коливання МН, які можна спостерігати.

Зауважимо, що на відміну від дії монохроматичної електромагнітної хвилі на МН, коли є сенс говорити про передані частинці енергію, імпульс та генерацію моменту імпульсу за одиницю часу, при опроміненні ультракороткими лазерними імпульсами доцільно говорити про обчислення значення цих величин, знайдене за весь час дії ультракороткого імпульсу. Такий розгляд дає змогу звести задачу дії ультракорот-

кого імпульсу на МН до задачі знаходження фур'є-компонент згаданих величин, які мають повний свій аналог у монохроматичному випадку.

Вивчаючи переданий МН імпульс, водночас знайдемо і дослідимо компоненти тензора поляризованості сфероїдальної МН з урахуванням впливу на них роз-мірних залежностей плазмонних резонансів.

II. ПОСТАНОВКА ЗАДАЧІ

Нехай на однорідну металеву наночастинку (МН) еліпсоїдальної форми налітає ультракороткий лазерний імпульс. Форму лазерного імпульсу задамо у вигляді:

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = \mathbf{E}^{(0)} e^{-\Gamma^2 \left(t - \frac{\mathbf{k}_0 \mathbf{r}}{\omega_0}\right)^2} \cos \left[\omega_0 \left(t - \frac{\mathbf{k}_0 \mathbf{r}}{\omega_0} \right) \right]. \quad (1)$$

В (1) $\mathbf{E}^{(0)}$ електричне поле в максимумі імпульсу, ω_0 — несуча частота, \mathbf{k}_0 — відповідний цій частоті хвильовий вектор ($k_0 = \omega/c$, c — швидкість світла), Γ — величина, обернена тривалості імпульсу, t — час, \mathbf{r} — радіус-вектор.

У цій роботі основну увагу буде приділено дослідженню особливостей згенерованого в МН моменту імпульсу в залежності від її форми. При дослідженні набутого частинкою моменту механічного імпульсу від ультракороткого лазерного імпульсу (1) вихідним для нас буде рівняння, яке характеризує закон зміни моменту імпульсу

$$\frac{d\mathbf{M}}{dt} = \mathbf{K}. \quad (2)$$

У (2) \mathbf{M} — момент імпульсу наночастинки, \mathbf{K} — момент сил, який, згідно з [14], має вигляд

$$\mathbf{K} = \mathbf{d} \times \mathbf{E}, \quad (3)$$

де $\mathbf{d}(\mathbf{r}, t)$ — дипольний момент частинки (який ми вважаємо дійсним).

Оскільки під дією ультракороткого імпульсу момент імпульсу \mathbf{M} міняється з часом дуже швидко, то має сенс лише остаточна зміна \mathbf{M} за час дії лазерного імпульсу (τ). Якщо проінтегрувати (2) за час дії імпульсу (від $-\tau/2$ до $\tau/2$), то отримуємо:

$$\delta\mathbf{M} = \int_{-\tau/2}^{\tau/2} \mathbf{K}(t) dt. \quad (4)$$

Згідно з (3) і (1), при $t > |\tau|$ (нагадаємо, що $\tau \sim 1/\Gamma$) величина $\mathbf{K}(t) \rightarrow 0$. Тому в (4) можна формально записати

$$\delta\mathbf{M} = \int_{-\infty}^{\infty} \mathbf{K}(t) dt \quad (5)$$

і скористатися фур'є-перетворенням. Тоді з (3) і (5) отримуємо:

$$\delta\mathbf{M} = \int_{-\infty}^{\infty} \frac{d\omega}{2\pi} \{ \mathbf{d}(\mathbf{r}, \omega) \times \mathbf{E}^*(\mathbf{r}, \omega) \}. \quad (6)$$

Отже, щоб знайти $\delta\mathbf{M}$, нам потрібно знати фур'є-компоненту дипольного моменту наночастинки $\mathbf{d}(\mathbf{r}, \omega)$ і фур'є-компоненту поля (1). Що стосується фур'є-компоненти електричного поля лазерного імпульсу, то, використовуючи вираз (1), легко знаходимо

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}, \omega) = \int_{-\infty}^{\infty} \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) e^{i\omega t} dt = \frac{\sqrt{\pi}}{2\Gamma} \mathbf{E}^{(0)} \times \left(e^{-\frac{(\omega-\omega_0)^2}{4\Gamma^2}} + e^{-\frac{(\omega+\omega_0)^2}{4\Gamma^2}} \right) e^{i\mathbf{k}_0 \mathbf{r}} \left(\frac{\omega}{\omega_0} \right). \quad (7)$$

Перш ніж мова піде про знаходження фур'є-компоненти дипольного моменту МН, який індукується в частинці електричним полем (1), зауважимо, що $\mathbf{d}(\mathbf{r}, \omega)$ і $\mathbf{E}(\mathbf{r}, \omega)$ визначають також величину механічного імпульсу, переданого частинці. Справді, якщо виходити з виразу для сили Лоренца, яка діє на заряд e , що рухається зі швидкістю \mathbf{v}

$$\mathbf{F}_0 = e \mathbf{E} + \frac{e}{c} \mathbf{v} \times \mathbf{H}, \quad (8)$$

то для результуючої сили, яка діє на нейтральну в цілому систему зарядів, отримуємо формулу

$$\mathbf{F}(\mathbf{r}, t) = (\mathbf{d}(\mathbf{r}, t) \nabla) \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) + \frac{1}{c} \dot{\mathbf{d}}(\mathbf{r}, t) \times \mathbf{H}(\mathbf{r}, t). \quad (9)$$

У (8) і (9) $\mathbf{H}(\mathbf{r}, t)$ — магнітне поле хвилі, яке пов'язане з $\mathbf{E}(\mathbf{r}, t)$ рівнянням Максвелла

$$-\frac{1}{c} \frac{d}{dt} \mathbf{H} = \text{rot } \mathbf{E}. \quad (10)$$

Зміна імпульсу наночастинки під дією сили (8) визначається рівнянням Ньютона

$$\frac{d\mathbf{p}}{dt} = \mathbf{F}. \quad (11)$$

Із (11) знаходимо величину механічного імпульсу $\delta\mathbf{p}$, переданого МН за час дії лазерного імпульсу,

$$\delta\mathbf{p} = \int_{-\tau/2}^{\tau/2} \mathbf{F}(t) dt \rightarrow \int_{-\infty}^{\infty} \mathbf{F}(t) dt. \quad (12)$$

Розширюючи границі інтегрування, ми скористалися тими ж міркуваннями, що і при отриманні виразу (5).

Переходячи в (12) до фур'є-перетворення з використанням (9), (10), одержуємо

$$\delta \mathbf{p} = \int_{-\infty}^{\infty} \frac{d\omega}{2\pi} \left\{ (\mathbf{d}(\mathbf{r}, \omega) \nabla) \mathbf{E}^*(\mathbf{r}, \omega) + \mathbf{d}(\mathbf{r}, \omega) \times [\nabla \times \mathbf{E}^*(\mathbf{r}, \omega)] \right\}. \quad (13)$$

Отже, бачимо, що переданий МН імпульс виражається через фур'є-компоненти електричного поля лазерного імпульсу й дипольного моменту частинки. Електричне поле лазерного імпульсу ми задали (формула (7)), а дипольний момент частинки потрібно знайти. Цьому присвячений наступний параграф.

III. ДИПОЛЬНИЙ МОМЕНТ МЕТАЛЕВОЇ НАНОЧАСТИНКИ

Для знаходження вигляду дипольного моменту, який наводиться полем (1) у МН, можна скористатися зв'язком між дипольним моментом та величиною високочастотного струму, що генерується цим полем у наночастинці:

$$\frac{\partial}{\partial t} \mathbf{d}(\mathbf{r}, t) = \int_V d^3 r' \mathbf{j}(\mathbf{r}', t), \quad (14)$$

де V — об'єм наночастинки. В просторово-неоднорідному електричному полі інтеграл за об'ємом наночастинки може залежати від положення центру мас наночастинки в просторі, який визначається вектором \mathbf{r} . Зауважимо, що, визначаючи тиск лазерного потоку на малу частинку, часто використовують наближення, у якому частинку розглядають як фізично нескінченно малий об'єкт (із дипольним моментом у точці \mathbf{r}). Докладніше цей аспект ми розглянемо нижче.

Із (14) для фур'є-компоненти дипольного моменту частинки отримуємо:

$$\mathbf{d}(\mathbf{r}, \omega) = \frac{i}{\omega} \int_V d^3 r' \mathbf{j}(\mathbf{r}', \omega). \quad (15)$$

Варто нагадати, що коли довжина лазерної хвилі (у випадку (1) довжина несучої хвилі) значно більша від розмірів наночастинки, то поле такої хвилі індукує всередині частинки потенціальне поле $\mathbf{E}_{\text{in}}(\mathbf{r}, t)$. Із цим полем пов'язане так зване електричне поглинання. Крім того, магнітний складник хвилі, що пов'язаний з електричним складником рівнянням (10), індукує в частинці вихрове електричне поле $\mathbf{E}_{\text{ed}}(\mathbf{r}, t)$, з яким пов'язане так зване магнітне поглинання (див., наприклад, [12,15]). В [11] показано, що, на відміну від опромінення частинки монохроматичною лазерною хвилею, при опроміненні ультракороткими лазерними імпульсами магнітне поглинання є значно слабшим порівняно з електричним. Це пояснюється тим, що ультракороткий імпульс містить великий набір частот, у тому числі й таких, які збігаються з плазмонними резонансами. Ці частоти і дають визначальний внесок у поглинання. У зв'язку зі сказаним вище, у цій роботі

при знаходженні $\mathbf{j}(\mathbf{r}, \omega)$ ми будемо враховувати тільки потенціальне електричне поле \mathbf{E}_{in} .

Раніше ми отримали загальні вирази для величин переданого ультракоротким лазерним імпульсом металевій наночастинці механічного імпульсу (13) та для генерації моменту імпульсу (6). Для повноти картини, наведемо також вираз для поглинутої частинкою енергії, внаслідок дії на неї лазерного імпульсу.

Одержуючи вирази для переданого імпульсу і згенерованого моменту імпульсу, ми задавали поле $\mathbf{E}_{\text{in}}(\mathbf{r}, t)$ у дійсному вигляді і вважали, що дипольний момент також дійсний. Оскільки величини $\mathbf{j}(\mathbf{r}, t)$ і $\mathbf{E}_{\text{in}}(\mathbf{r}, t)$ нам ще треба знайти і ми будемо користуватися комплексними змінними, то доцільно записати поглинуту частинкою енергію в загальному вигляді (тобто не вважаючи заздалегідь $\mathbf{j}(\mathbf{r}, t)$ і $\mathbf{E}_{\text{in}}(\mathbf{r}, t)$ дійсними). Отже, поглинута частинкою енергія за час тривалості лазерного імпульсу буде

$$\delta w = \int_V d^3 r \int_{-\tau/2}^{\tau/2} (\text{Re } \mathbf{j}(\mathbf{r}, t)) (\text{Re } \mathbf{E}_{\text{in}}(\mathbf{r}, t)) dt. \quad (16)$$

Після формальної заміни границь інтегрування від $-\infty$ до ∞ (міркування ті ж, що і при отриманні (5)) і розкладу $\mathbf{j}(\mathbf{r}, t)$ і $\mathbf{E}_{\text{in}}(\mathbf{r}, t)$ в інтеграл Фур'є (по змінній t) із (16) отримуємо:

$$\delta w = \int_V d^3 r \times \int_{-\infty}^{\infty} \frac{d\omega}{8\pi} \{ \mathbf{j}(\mathbf{r}, \omega) + \mathbf{j}^*(\mathbf{r}, -\omega) \} \left\{ \mathbf{E}(\mathbf{r}, \omega) + \mathbf{E}^*(\mathbf{r}, -\omega) \right\}^*. \quad (17)$$

Якщо $\mathbf{j}(\mathbf{r}, t)$ і $\mathbf{E}_{\text{in}}(\mathbf{r}, t)$ — дійсні величини, то маємо співвідношення:

$$\mathbf{j}^*(\mathbf{r}, -\omega) = \mathbf{j}(\mathbf{r}, \omega); \quad \mathbf{E}_{\text{in}}^*(\mathbf{r}, -\omega) = \mathbf{E}_{\text{in}}(\mathbf{r}, \omega), \quad (18)$$

і тоді замість (16) буде:

$$\delta w = \int_V d^3 r \int_{-\infty}^{\infty} \frac{d\omega}{2\pi} \mathbf{j}(\mathbf{r}, \omega) \mathbf{E}_{\text{in}}^*(\mathbf{r}, \omega). \quad (19)$$

Повернемося тепер до задачі знаходження вигляду дипольного моменту металевій наночастинки. Згідно з (14) або (15), для цього достатньо знайти вектор густини струму, індукованого електричним полем лазерного імпульсу. За визначенням,

$$\mathbf{j}(\mathbf{r}, t) = \frac{2e}{(2\pi\hbar)^3} \int_{-\infty}^{\infty} \mathbf{v} f d^3(mv). \quad (20)$$

У (20) \mathbf{v} — швидкість електрона, f — функція розподілу електронів за швидкостями, яку доцільно записати у вигляді

$$f = f_0(\varepsilon) + f_1(\mathbf{r}, \mathbf{v}, t), \quad (21)$$

де $f_0(\varepsilon)$ — ферміївська функція розподілу, яка залежить тільки від енергії електрона ε , $f_1(\mathbf{r}, \mathbf{v}, t)$ — поправка до ферміївського розподілу, спричинена дією внутрішнього поля $\mathbf{E}_{\text{in}}(\mathbf{r}, t)$. Функція f_1 задовольняє лінеаризоване кінетичне рівняння, яке у фур'є-представленні має вигляд:

$$(\nu - i\omega) f_1(\mathbf{r}, \mathbf{v}, \omega) + \mathbf{v} \frac{\partial}{\partial \mathbf{r}} f_1(\mathbf{r}, \mathbf{v}, \omega) + e \mathbf{E}_{\text{in}}(\mathbf{r}, \omega) \mathbf{v} \frac{\partial}{\partial \varepsilon} f_0(\varepsilon) = 0, \quad (22)$$

де ν — частота об'ємних зіткнень електрона. Крім рівняння (22), функція $f_1(\mathbf{r}, \mathbf{v}, \omega)$ повинна також задовольняти граничну умову, яка у випадку дифузного розсіювання електронів на межі наночастинки має вигляд:

$$f_1(\mathbf{r}, \mathbf{v}, \omega)|_S = 0, \quad v_n < 0, \quad (23)$$

v_n — нормальна до поверхні S швидкість електрона. У (22) залишається ще не визначеною величина $\mathbf{E}_{\text{in}}(\mathbf{r}, \omega)$. Щоб знайти її вигляд, зауважимо, що згідно з (7) фур'є-компонента лазерного поля $\mathbf{E}(\mathbf{r}, \omega)$ при умові

$$k_0 R \ll 1, \quad (24)$$

де R — характерний розмір МН, стає на масштабах порядку R практично просторово-однорідною величиною. Це дозволяє нам, виконуючи нерівність (24), вибрати зв'язок між полями всередині й поза еліпсоїдальною МН таким, як і у випадку дії на частинку у вакуумі просторово-однорідного поля [14], тобто прийняти

$$\{\mathbf{E}_{\text{in}}(\mathbf{r}, \omega)\}_j = \frac{\{\mathbf{E}(\mathbf{r}, \omega)\}_j}{1 + L_j [\epsilon_{jj}(\omega) - 1]}. \quad (25)$$

У (25) L_j — фактор деполаризації, $\epsilon_{jj}(\omega)$ — діагональна компонента тензора діелектричної проникності. Якщо частинка знаходиться не у вакуумі, а в середовищі з діелектричною проникністю ϵ_m , то у формулі (25) слід провести формальну заміну $\epsilon_{jj} \rightarrow \epsilon_{jj}/\epsilon_m$.

Як бачимо із (7), на значних відстанях, коли $|\mathbf{k}_0 \mathbf{r}| \geq 1$, поле $\mathbf{E}(\mathbf{r}, \omega)$ може істотно залежати від координати, хоча в масштабах розміру частинки при виконанні умови (24) його можна вважати просторово-однорідним. Тому далі, розглядаючи процес всередині частинки, будемо початок координат поміщати в центр частинки і покладати

$$\mathbf{E}_{\text{in}}(\mathbf{r}, \omega) \approx \mathbf{E}_{\text{in}}(0, \omega) \equiv \mathbf{E}_{\text{in}}(\omega).$$

Розглядаючи ж явища, що визначаються градієнтами зовнішнього поля (наприклад, сила тиску лазерного випромінювання на МН) на масштабах порядку розміру частинки і більших, необхідно враховувати залежність від \mathbf{r} (див. далі вираз (37)).

Розв'язок рівняння (22) з граничною умовою (23) має вигляд (деталі див. [12]):

$$f_1(\mathbf{r}', \mathbf{v}', \omega) = -e \mathbf{v}' \mathbf{E}'_{\text{in}}(\omega) \frac{\partial f_0}{\partial \varepsilon} \times \frac{1 - e^{-(\nu - i\omega)t'(\mathbf{r}', \mathbf{v}')}}{\nu - i\omega}, \quad (26)$$

де

$$t'(\mathbf{r}', \mathbf{v}') = \frac{1}{v'^2} \left[\mathbf{r}' \mathbf{v}' + \sqrt{(R^2 - r'^2)v'^2 + (\mathbf{r}' \mathbf{v}')^2} \right] \quad (27)$$

— характеристика рівняння (22). У (27) вектори \mathbf{r}' і \mathbf{v}' зображають відповідно вектори \mathbf{r} і \mathbf{v} у деформованій системі координат, у якій еліпсоїд із напівосями R_i переходить у сферу із радіусом R такого ж об'єму [12].

Зауважимо, що функція (26) залежить від координат, хоча поле \mathbf{E}_{in} всередині частинки вважалось однорідним. Координатна залежність $f_1(\mathbf{r}, \mathbf{v}, \omega)$ нав'язана граничною умовою (23).

Якщо тепер підставити (26) у (21) і (20) та ввести тензор комплексної провідності $\sigma_{\alpha\beta}^c$ співвідношенням

$$\{j(\mathbf{r}, \omega)\}_\alpha = \sum_{\beta=1}^3 \sigma_{\alpha\beta}^c(\mathbf{r}, \omega) \{E_{\text{in}}(\omega)\}_\beta, \quad (28)$$

то для компонент тензора комплексної провідності отримуємо вираз:

$$\sigma_{\alpha\beta}^c(\mathbf{r}, \omega) = \frac{2e}{(2\pi\hbar)^3} \times \int v_\alpha \left\{ -e v_\beta \frac{\partial f_0}{\partial \varepsilon} \frac{1 - e^{-(\nu - i\omega)t'(\mathbf{r}', \mathbf{v}')}}{\nu - i\omega} \right\} d^3(mv). \quad (29)$$

Із (29) випливає, що

$$\sigma_{\alpha\beta}^c(\mathbf{r}, \omega) = \{\sigma_{\alpha\beta}^c(\mathbf{r}, -\omega)\}^*. \quad (30)$$

Із (18), (28) і (30) видно, що коли зовнішнє електричне поле задається як дійсне, то й вектор густини струму в наночастинці буде дійсною величиною.

Якщо тепер підставити (28) у (15), то отримуємо

$$d_\beta(\omega) = \frac{i}{\omega} \sum_{\beta'=1}^3 \int_V d^3r \sigma_{\beta\beta'}^c(\mathbf{r}, \omega) \{E_{\text{in}}(\omega)\}_{\beta'} = \frac{i}{\omega} V \sum_{\beta'=1}^3 \langle \sigma_{\beta\beta'}^c(\omega) \rangle \{E_{\text{in}}(\omega)\}_{\beta'}. \quad (31)$$

У (31) ми ввели усереднену за об'ємом наночастинки комплексну провідність

$$\langle \sigma_{\beta\beta'}^c(\omega) \rangle \equiv \frac{1}{V} \int_V \sigma_{\beta\beta'}^c(\mathbf{r}, \omega) d^3r. \quad (32)$$

Якщо ввести тепер тензор поляризованості $\alpha_{\beta\beta'}(\omega)$, наведеної в наночастинці просторово-однорідним електричним полем $\mathbf{E}(0, \omega)$

$$d_{\beta}(\omega) = \sum_{\beta'=1}^3 \alpha_{\beta\beta'}(\omega) E_{\beta'}(0, \omega), \quad (33)$$

то з порівняння виразів (31) і (33) і врахування (25) знаходимо:

$$\alpha_{\beta\beta'}(\omega) = \frac{i}{\omega} V \frac{\langle \sigma_{\beta\beta'}^c(\omega) \rangle}{1 + L_{\beta'} \{ \epsilon_{\beta\beta'}(\omega) - 1 \}}. \quad (34)$$

Отже, ми отримали вираз для компонент тензора поляризованості через компоненти тензора комплексної провідності. Усереднені за об'ємом наночастинки компоненти тензора комплексної провідності задано формулами (32) і (29).

Далі скористуємося відомим співвідношенням між компонентами тензора діелектричної проникності й тензора комплексної провідності:

$$\epsilon_{\alpha\beta}(\mathbf{r}, \omega) = \delta_{\alpha\beta} + \frac{4\pi i}{\omega} \sigma_{\alpha\beta}^c(\mathbf{r}, \omega), \quad (35)$$

і виразимо компоненти тензора поляризованості тільки через компоненти діелектричної проникності. В головних осях еліпсоїда тензор поляризованості є діагональним і його компоненти рівні

$$\alpha_{\beta\beta}(\omega) = \frac{V}{4\pi} \frac{\epsilon_{\beta\beta}(\omega) - 1}{1 + L_{\beta} \{ \epsilon_{\beta\beta}(\omega) - 1 \}}. \quad (36)$$

У (36) $\epsilon_{\beta\beta}(\omega)$ — усереднена за об'ємом наночастинки компонента тензора діелектричної проникності (усереднення стосується узявної частини $\epsilon_{\beta\beta}$).

Зробимо одне зауваження. Отриманий вище дипольний момент (31) не залежить від координат. Цей результат пов'язаний з тим, що при одержанні (31) ми, користуючись нерівністю (24), поклали в (25) $\mathbf{E}(\mathbf{r}, \omega) \rightarrow \mathbf{E}(0, \omega)$. Якщо цього не робити, але все ж таки нехтувати просторовою неоднорідністю $\mathbf{E}(\mathbf{r}, \omega)$ всередині наночастинки і, виконуючи інтегрування (15), виносити $\mathbf{E}(\mathbf{r}, \omega)$ як плавну функцію за межі інтеграла, то, замість (33), ми отримали б

$$d_{\beta}(\mathbf{r}, \omega) = \sum_{\beta'=1}^3 \alpha_{\beta\beta'}(\omega) E_{\beta'}(\mathbf{r}, \omega). \quad (37)$$

Таке уточнення необхідне, коли сам ефект визначається градієнтами зовнішнього поля (наприклад, ефект передачі частинці механічного імпульсу лазерним імпульсом, див. формулу (13)).

IV. МОМЕНТ ІМПУЛЬСУ

Досі мова йшла про загальний випадок металевий наночастинки у формі еліпсоїда з напівосями R_x, R_y, R_z . Для демонстрації залежності фізичних властивостей від форми частинки нам буде достатньо обмежитися частинкою у формі еліпсоїда обертання (сфероїда). Отже, далі будемо покладати $R_x = R_y \equiv R_{\perp}$, $R_z \equiv R_{\parallel}$. У цьому випадку в головних осях еліпсоїда відмінними від нуля будуть тільки компоненти тензора поляризованості

$$\alpha_{xx} = \alpha_{yy} \equiv \alpha_{\perp}, \quad \alpha_{zz} \equiv \alpha_{\parallel}. \quad (38)$$

При цьому із (36) отримуємо:

$$\alpha_{\perp\parallel}(\omega) = \frac{V}{4\pi} \frac{\epsilon_{\perp\parallel}(\omega) - 1}{1 + L_{\perp\parallel} \{ \epsilon_{\perp\parallel}(\omega) - 1 \}}. \quad (39)$$

Компоненти тензора діелектричної проникності $\epsilon_{\perp\parallel}(\omega)$, якщо в (35) перейти від комплексної провідності до дійсної (дисипативної) провідності, набувають вигляду:

$$\epsilon_{\perp\parallel}(\omega) = 1 - \frac{\omega_{pl}^2}{\omega^2} + i \frac{4\pi}{\omega} \sigma_{\perp\parallel}(\omega). \quad (40)$$

У (40) $\sigma_{\perp}(\omega)$ і $\sigma_{\parallel}(\omega)$ — компоненти усередненої за об'ємом наночастинки високочастотної провідності, відповідно, поперек і вздовж осі обертання еліпсоїда. Їхній конкретний вигляд залежно від частоти ω і відношення R_{\perp}/R_{\parallel} ми дослідили в [12]. У (40) ω_{pl} — плазмова (ленгмюрівська) частота.

Домножимо чисельник і знаменник у (39) на величину комплексно спряжену до знаменника, з таким розрахунком, щоб знаменник став дійсною величиною. Далі в одержаний вираз підставимо (40). У результаті будемо мати:

$$\alpha_{\perp\parallel}(\omega) = \frac{V}{4\pi} \frac{-\omega_{pl}^2(\omega^2 - \omega_{\perp\parallel}^2) + L_{\perp\parallel} (4\pi\sigma_{\perp\parallel}(\omega)\omega)^2 + i4\pi\sigma_{\perp\parallel}(\omega)\omega^3}{(\omega^2 - \omega_{\perp\parallel}^2)^2 + (4\pi L_{\perp\parallel}\sigma_{\perp\parallel}(\omega)\omega)^2}, \quad (41)$$

де ми позначили

$$\omega_{\perp\parallel} = \sqrt{L_{\perp\parallel}} \omega_{pl}. \quad (42)$$

У (42) ω_{\parallel} означає частоту плазмового (дипольного) коливання вздовж осі обертання еліпсоїдальної наночастинки, а ω_{\perp} — частоту такого ж коливання у напрямку, перпендикулярному до осі обертання. Аналогічно $L_{\perp\parallel}$

— фактори деполяризації МН для відповідних напрямків. Відповідні вирази й оцінки останньої величини для частинок сфероїдальної форми можна знайти в [16, с.142].

У нашому випадку, коли в головних осях еліпсоїда, згідно з (38), відмінними від нуля є лише компоненти тензора поляризації α_{\perp} і α_{\parallel} , виразу для дипольного моменту (замість загального виразу (37)) можна надати простішої векторної форми:

$$\mathbf{d}(\omega) = \alpha_{\perp}(\omega) \mathbf{E}(0, \omega) + (\alpha_{\parallel}(\omega) - \alpha_{\perp}(\omega)) (\mathbf{n}_0 \mathbf{E}(0, \omega)) \mathbf{n}_0. \quad (43)$$

У (43) \mathbf{n}_0 — орт, який задає напрямок осі обертання сфероїда.

Тепер ми маємо всі необхідні величини, щоб отримати вираз для моменту імпульсу, згенерованого в частинці лазерним імпульсом. Згідно з (6), використовуючи (43) і (7), знаходимо:

$$\begin{aligned} \mathbf{d}(\omega) \times \mathbf{E}^*(0, \omega) &= (\alpha_{\parallel}(\omega) - \alpha_{\perp}(\omega)) (\mathbf{n}_0 \mathbf{E}(0, \omega)) (\mathbf{n}_0 \times \mathbf{E}^*(0, \omega)) \\ &= \frac{\pi}{(2\Gamma)^2} (\alpha_{\parallel}(\omega) - \alpha_{\perp}(\omega)) \left\{ e^{-\frac{(\omega - \omega_0)^2}{4\Gamma^2}} + e^{-\frac{(\omega + \omega_0)^2}{4\Gamma^2}} \right\}^2 (\mathbf{n}_0 \mathbf{E}_0) (\mathbf{n}_0 \times \mathbf{E}_0). \end{aligned} \quad (44)$$

Урахуємо, що

$$|(\mathbf{n}_0 \mathbf{E}_0)(\mathbf{n}_0 \times \mathbf{E}_0)| = \frac{1}{2} \sin 2\theta E_0^2, \quad (45)$$

де θ — кут між векторами \mathbf{n}_0 і \mathbf{E}_0 , тобто між віссю обертання сфероїда й напрямком поля \mathbf{E}_0 .

Тоді, виходячи з (6), і беручи до уваги (44) і (45), матимемо:

$$\begin{aligned} \delta M &= \frac{\sin 2\theta}{16\Gamma^2} E_0^2 \int_{-\infty}^{\infty} d\omega (\alpha_{\parallel}(\omega) - \alpha_{\perp}(\omega)) \\ &\quad \times \left\{ e^{-\frac{(\omega - \omega_0)^2}{4\Gamma^2}} + e^{-\frac{(\omega + \omega_0)^2}{4\Gamma^2}} \right\}^2. \end{aligned} \quad (46)$$

Отже, ми отримали основну формулу, яка характеризує величину механічного моменту, згенерованого

в асиметричній наночастинці під дією на неї ультракороткого лазерного імпульсу.

Зауважимо, що якщо в (44), замість $\mathbf{d}(\omega)$, брати (відповідно до (37)) загальніший вираз $\mathbf{d}(\mathbf{r}, \omega)$, а, замість $\mathbf{E}^*(0, \omega)$, брати $\mathbf{E}^*(\mathbf{r}, \omega)$, то формула (46) залишилась би незмінною.

Формулу (46) ми використали для побудови залежності набутого моменту імпульсу від форми МН та характеристик лазерного імпульсу.

Перш ніж переходити до обговорення графічних залежностей, зауважимо ще таке. Якщо, замість металеві сфероїдальної частинки, розглянути такої ж форми діелектричну частинку, діелектрична проникність $\epsilon(\omega)$ якої є скалярною й дійсною величиною (провідність відсутня), то із (3), (36) і (43) для моменту сил отримуємо відому формулу [14]

$$K = \frac{V}{8\pi} (\epsilon(\omega) - 1)^2 \frac{(1 - 3L_{\parallel}) \sin 2\theta E^2}{(L_{\parallel} \epsilon(\omega) + 1 - L_{\parallel}) ((1 - L_{\parallel}) \epsilon(\omega) + 1 + L_{\parallel})}. \quad (47)$$

На відміну від (47), у МН частотна залежність як моменту сил, так і згенерованого моменту імпульсу визначається внеском в поглинання плазмонних резонансів. Своєю чергою положення плазмових резонансів на шкалі частот і їхні напівширини істотно залежать від форми наночастинки. Цим механізм генерації моменту імпульсу в металевих частинках істотно відрізняється від аналогічних процесів у діелектричних наночастинках.

Проілюструємо одержані вище аналітичні вирази графічно. На рис. 1 зображено частотну залежність двох компонент дійсної частини тензора поляризова-

ності, що має форму сплюсненого сфероїда. Обчислення були виконані за формулою (41), у якій компоненти тензора провідності вибрані у вигляді [11]:

$$\sigma_{(\perp)}(\omega) = \frac{9 ne^2 v_F}{8 m \omega^2 R_{\perp}} \left(\frac{\eta_e^H(e_s)}{\rho_H(e_s)} \right), \quad (48)$$

де n — концентрація електронів, $\rho_H(e_s)$ і $\eta_e^H(e_s)$ — плавні функції, залежні лише від ексцентриситету сфероїда e_s . Явний вигляд функції $\rho_H(e_s)$ можна знайти в [16] (формула (40)), а функція $\eta_e^H(e_s)$ має таку форму:

$$\eta_e^H(e_p) = \begin{cases} -\frac{1}{4e_p^2} (1 - 2e_p^2) \sqrt{1 - e_p^2} + \frac{1}{4e_p^3} \arcsin e_p, & R_{\perp} < R_{\parallel} \\ \frac{1}{4e_p^2} (1 + 2e_p^2) \sqrt{1 + e_p^2} - \frac{1}{4e_p^3} \ln(e_p + \sqrt{1 + e_p^2}), & R_{\perp} > R_{\parallel} \end{cases} \quad (49)$$

Для сферичної частинки $\eta(0) = \rho(0) = 2/3$.

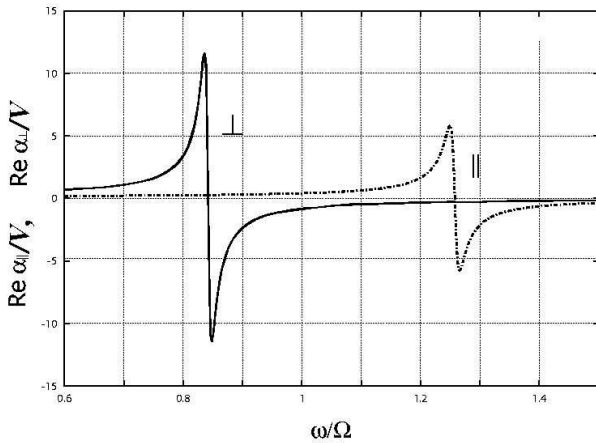


Рис. 1. Залежність поздовжньої (\parallel) і поперечної (\perp) компонент тензора поляризованості, сплюсненої сфероїдальної МН, нормованих на об'єм МН, від відношення частоти падаючої хвилі до частоти плазмонного резонансу Ω , характерної для сферичної МН. Об'єм МН відповідає об'ємові сфери з радіусом R .

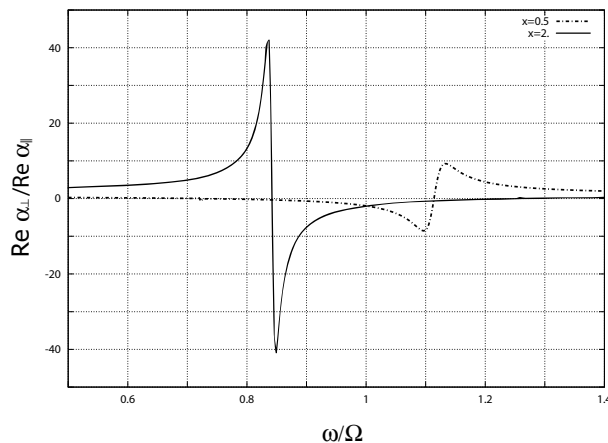


Рис. 2. Залежність відношення компонент тензора поляризованості у сфероїдальній сплюснутій (суцільна лінія, $R_{\perp}/R_{\parallel} = 2$) і витягнутій (штрихпунктирна лінія, $R_{\perp}/R_{\parallel} = 0.5$) МН від відношення частоти падаючої хвилі до частоти плазмонного резонансу Ω , характерної для сферичної МН. Об'єм МН відповідає об'ємові сфери з радіусом R .

Як видно з рисунка, реальна частина густини поздовжньої й поперечної поляризованостей МН змінюють знак при деяких значеннях частот. Критична час-

тота, на якій відбувається зміна знака, залежить від міри витягнутості чи сплюснутості МН. Резонансний характер поляризованості відповідає плазмонним резонансам (поперечному й поздовжньому) у несферичних МН.

На рис. 2 проілюстровано частотну залежність поляризованості МН, які мають форму сплюсненого або витягнутого сфероїда. Порівнюючи поведінку поляризованостей у витягнутій і сплюснутій наночастинках (при рештці однакових умов) бачимо, що, крім відмінності в абсолютному значенні, вони мають дзеркально симетричний хід одна щодо іншої.

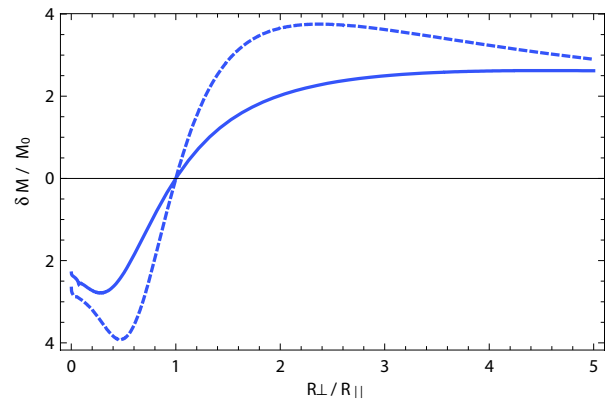


Рис. 3. Залежність нормованого моменту імпульсу сфероїдальної МН (на частоті несучої хвилі, що збігається з частотою плазмонного резонансу Ω у сферичній частинці такого ж об'єму) від ступеня сплюснутості чи витягнутості частинки, що задається відношенням R_{\perp}/R_{\parallel} . Ширини падаючого імпульсу $\Gamma = 1.5 \times 10^{15} \text{ c}^{-1}$ (суцільна крива) і $\Gamma = 1 \times 10^{15} \text{ c}^{-1}$ (штрихова крива). $R = 200 \text{ \AA}$.

Дослідимо тепер залежність згенерованого моменту імпульсу від форми сфероїдальної частинки, яку задаватимемо через відношення R_{\perp}/R_{\parallel} . Вивчаючи загалом залежність фізичних властивостей наночастинки від її форми, доцільно порівнювати між собою поглинання різних за формою, але однакових за об'ємом частинок. Умова сталості об'єму частинки ($V = \frac{4\pi}{3} R_{\perp}^2 R_{\parallel} = \text{const}$) при заданому відношенні R_{\perp}/R_{\parallel} визначає значення R_{\perp} і R_{\parallel} . Наприклад,

$$R_{\perp} = R \left(\frac{R_{\perp}}{R_{\parallel}} \right)^{1/3}, \quad (50)$$

де R — радіус сфери еквівалентного об'єму. Для прикладу, у цій роботі ми брали $R = 200 \text{ \AA}$.

Будемо обчислювати величину $\delta M/M_0$, де через

$$M_0 = \frac{V E_0^2}{8\pi \omega_0} \sin 2\theta \quad (51)$$

ми ввели величину нормування, яка має розмірність моменту імпульсу.

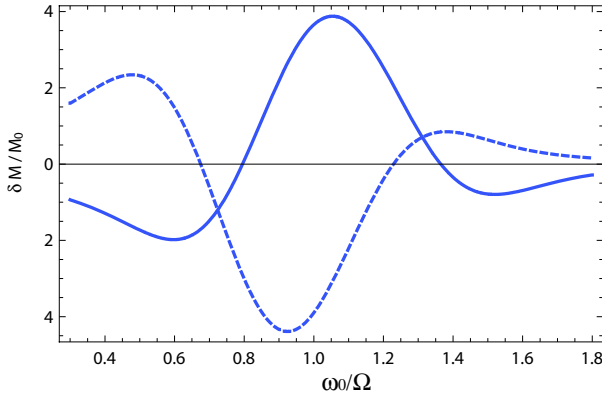


Рис. 4. Залежність нормованого моменту імпульсу сплюснутої ($R_{\perp}/R_{\parallel} = 2$ – суцільна крива) і витягнутої ($R_{\perp}/R_{\parallel} = 0.5$ – пунктирна крива) сфероїдальної МН від частоти несучої хвилі, віднесеної до частоти плазмонного резонансу у сферичній частинці. В обох випадках $\Gamma = 1 \times 10^{15} \text{ c}^{-1}$, $R = 200 \text{ \AA}$.

На рис. 3 подано залежність $\delta M/M_0$ (на частоті несучої хвилі, що збігається з частотою дипольного плазмона $\omega_0 = \omega_p/\sqrt{3} \equiv \Omega$, яка в електричному поглинанні є резонансною для сферичної частинки) від міри сплюснутості чи витягнутості сфероїдальної частинки. Розрахунки проводили з використанням формули (46) та дійсної частини формули (41) при $n = 4 \times 10^{22} \text{ cm}^{-3}$, $\omega_p \approx 1 \times 10^{16} \text{ c}^{-1}$ та $v_F \approx 1 \times 10^8 \text{ cm/c}$, узятих як для типового одновалентного металу. Криві 1, 2 відповідають різній тривалості падаючого імпульсу. Порівнюючи їх між собою, можна перекоонатися, що більшого моменту імпульсу набувають наночастинки від лазерного імпульсу зі все більшою його

тривалістю. Максимальне значення згенерованого моменту імпульсу досягається для частинок сплюснутої форми і мінімальне – для частинок витягнутої форми, що відповідає плазмонним резонансам, які досягаються при заданому значенні несучої частоти.

Якщо вибрати наночастинку несферичної форми з фіксованими значеннями відношення R_{\perp}/R_{\parallel} та величини Γ й змінювати лише величину несучої частоти поля, що падає на частинку, то можна виявити (рис. 4) наступне. Частотна поведінка моменту імпульсу, згенерованого в наночастинці лазерним імпульсом є для МН витягнутої форми ($R_{\perp}/R_{\parallel} < 1$) майже дзеркально симетричною до поведінки цієї величини у сплюснутих частинках ($R_{\perp}/R_{\parallel} > 1$), подібно до того, як це ми бачили вище (рис. 2.) для частотних залежностей поляризованості МН.

V. ВИСНОВКИ

Отримано аналітичні вирази для компонент тензора поляризованості сфероїдальної металеві наночастинки з урахуванням їхньої залежності від компонент тензора оптичної провідності. Проаналізовано і проілюстровано їхні частотні залежності при різних відношеннях радіусів кривизни сфероїда.

Побудовано теорію генерації механічного моменту імпульсу в несферичній металевій наночастинці при опроміненні її ультракороткими лазерними імпульсами різної тривалості. Вона справедлива як для випадку, коли довжина вільного пробігу електрона перевищує розміри частинки, так і у випадку менших її розмірів. Одержані аналітичні вирази дають змогу визначити величину набутого моменту імпульсу залежно від форми частинки, величини несучої частоти та ширини лазерного імпульсу. Для різних значень ширини імпульсу досліджено залежність набутого сфероїдальною металевію наночастинкою моменту імпульсу від ступеня її сплюснутості чи витягнутості як на частоті плазмонного резонансу, так і при частотах, що її перевищують або менші від неї.

[1] R. D. Fedorovich, A. G. Naumovets, P. M. Tomchuk, Phys. Rep. **328**, 73 (2000).
 [2] C. F. Bohren, D. R. Huffman, *Absorption and Scattering of Light by Small Particles* (Wiley, Weinheim, 2004).
 [3] J. A. A. J. Perenboom, P. Wyder, F. Meier, Phys. Rep. **78**, 173 (1981).
 [4] D. A. Stuart, A. J. Haes, C. R. Yonzon, E. M. Hicks, R. P. Van Duyne, J. E. E. Proc. Nanotechnol. **152**, 13 (2005).
 [5] N. L. Rosi, C. A. Mirkin, Chem. Rev. **105**, 1547 (2005).
 [6] X. Huang, P. K. Jain, I. H. El-Sayed, M. A. El-Sayed, Nanomed. **2**, 681 (2007).
 [7] Н. Г. Хлебнов, Квант. электрон. **38**, 50 (2008).
 [8] І. В. Блонський, Укр. фіз. журн. Огляди **5**, №2, 170

(2009).
 [9] А. Ф. Борщ, М. С. Бродин, В. И. Волков, В. Р. Ляховецкий, Р. Д. Федорович, Письма Журн. эксп. теор. физ. **84**, 248 (2006).
 [10] Y. Guillet, M. Rashidi-Huyeh, B. Palpant, Phys. Rev. B **79**, 045410 (2009).
 [11] N. I. Grigorichuk, P. M. Tomchuk, Phys. Rev. B **80**, 155456 (2009).
 [12] P. M. Tomchuk, N. I. Grigorichuk, Phys. Rev. B **73**, 155423 (2006).
 [13] Н. И. Григоричук, П. М. Томчук, Физ. низк. темп. **33**, 1119 (2007).
 [14] Л. Д. Ландау, Е. М. Лифшиц, *Электродинамика сплошных сред* (Наука, Москва, 1982).

- [15] М. І. Григорчук, П. М. Томчук, Журн. фіз. досл. **12**, 2701 (2008). [16] М. І. Григорчук, П. М. Томчук, Журн. фіз. досл. **9**, 135 (2005).

THE MOMENT PULSE TRANSFER TO THE ASYMMETRICAL METALLIC NANO-PARTICLE FROM THE ULTRASHORT LASER PULSE

P. M. Tomchuk¹, N. I. Grigorchuk²

¹*Institute for Physics, NAS of Ukraine, 46, Nauka Ave., Kyiv, UA-03680*
e-mail: ptomchuk@iop.kiev.ua

²*Bogolyubov Institute for Theoretical Physics, NAS of Ukraine, 14-b, Metrologichna St., Kyiv, UA-03680,*
e-mail: ngrigor@bitp.kiev.ua

The theory for the mechanical moment transfer to the asymmetrical nanoparticle from the ultrashort laser pulse is developed. It is established that the optical conductivity becomes a tensor for the particle sizes less than the electron free pass in it. The diagonal elements of this conductivity define the half-widths of the plasmon resonances. The expressions for the components of the polarization tensor of a spheroidal metallic nanoparticle is obtained.