

## МАГНІТНЕ ПОГЛИНАННЯ УЛЬТРАКОРОТКИХ ЛАЗЕРНИХ ІМПУЛЬСІВ МЕТАЛЕВИМИ НАНОЧАСТИНКАМИ СФЕРОЇДАЛЬНОЇ ФОРМИ

М. І. Григорчук<sup>1</sup>, П. М. Томчук<sup>2</sup>

<sup>1</sup>*Інститут теоретичної фізики ім. М. М. Боголюбова НАН України,  
вул. Метрологічна, 14-б, Київ, 03680*

<sup>2</sup>*Інститут фізики НАН України,  
просп. Науки, 4б, Київ, 03680*

(Отримано 23 серпня 2007 р.; в остаточному вигляді — 19 листопада 2007 р.)

Для наночастинок несферичної форми розроблено теорію, яка дає змогу обчислити енергію магнітного поглинання частинками при їх опроміненні ультракороткими лазерними імпульсами різної тривалості та довільному значенні несучих частот. Для частинок, що мають форму сплюсненого чи витягнутого сфероїда, знайдено залежність цієї енергії від орієнтації магнітного поля стосовно частинки, міри відхилення частинки від сферичної форми, тривалості імпульсу та величини несучої частоти. Установлено значне зростання поглинання при великих, порівняно з розмірами частинки, довжинах вільного пробігу електрона. Зіставлено феноменологічний і кінетичний підходи.

**Ключові слова:** ультракороткі лазерні імпульси, магнітне поглинання, металеві наночастинки, несферичні частинки.

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

### I. ВСТУП

За допомогою імпульсів малої тривалості можна вивчати динаміку швидких процесів, які відбуваються в атомах, молекулах і твердих тілах. Піко- і фемтосекундна роздільна здатність дає змогу вивчати коливальні й обертальні внутрішньо-молекулярні рухи, динаміку носіїв у напівпровідниках і напівпровідникових наноструктурах, фазові переходи у твердих тілах, формування й розрив хімічних зв'язків тощо [1,2]. Можливість одержання потужних фемтосекундних імпульсів привела до появи нової ділянки, яка швидко розвивається, — настільної фізики високих енергій.

Останніми роками приділяється увага експериментальним дослідженням ультрашвидкої динаміки електронів у металевих наночастинках. Металеві наночастинки (МН) є цікавими об'єктами як із погляду фізики конденсованого стану, так і з практично боку. Збільшення локальних електричних полів поблизу наночастинок робить їх корисними, як маркери в біологічних системах [3]. Загалом наноструктури широко використовують у сучасних приладах високошвидкісної електроніки та оптоелектроніки. Завдяки новітнім технічним досягненням надшвидкісної спектроскопії експериментально тепер стало можливим моніторити фемтосекундну динаміку електронного газу, обмеженого в МН [4]. Сучасні оптичні дослідження дають змогу реєструвати оптичний відгук окремої наночастинки і тим самим дозволяють вивчати властивості окремих нанооб'єктів [5]. Це відкрило нові прямі можливості зондування багатоелектронної динаміки в обмежених системах. Цікаві результати в згаданих напрямках були нещодавно одержані в роботах [6–9].

Як відомо, поглинання металевими наночастинками в полі монохроматичної електромагнітної (ЕМ)

хвилі, довжина якої значно більша від розмірів частинки, пов'язано як із індивідуальним, так і колективним рухом електронів. Внесок в індивідуальне поглинання дає як електрична компонента ЕМ-хвилі (електричне поглинання), так і магнітна компонента (магнітне поглинання). Колективний рух електронів проявляється в так званих плазмонних резонансах, пов'язаних зі збудженням плазмонних коливань електронного газу [10,11]. Внесок колективного поглинання стає суттєвим за умови, коли частота ЕМ хвилі близька до однієї з частот плазмонних резонансів. У попередніх роботах [12,13] ми показали, що при освітленні металеві наночастинки монохроматичною ЕМ-хвилею, частота якої далека від плазмонних резонансів, у поглинанні домінує індивідуальний механізм. При цьому встановлено, що залежно від розмірів і форми частинки, а також частоти й поляризації хвилі, магнітне поглинання може бути як значно більшим, так і значно меншим від електричного. Ситуація може змінитися при використанні ультракоротких імпульсів. По-перше, ультракороткий імпульс містить майже всі гармоніки, у тім числі й ті, які збігаються з плазмонними резонансами. Він дозволяє як викликати всі притаманні системі резонанси, так і вивчати відгук системи загалом. По-друге, розподіл частот за спектром ультракороткого імпульсу дуже неоднорідний (гауссовий). Названі фактори можуть змінити співвідношення між внеском електричного й магнітного поглинання. Особливості електричного поглинання ультракоротких імпульсів ми розглянули недавно у праці [14]. У цій статті зосередимося на вивченні особливостей поглинання, зумовленого впливом магнітної компоненти ультракороткого ЕМ-імпульсу. Це питання є досі мало вивчене, особливо для МН несферичної форми. Тому те, як проявиться форма частинки в поглинанні нею ультракоротких

лазерних імпульсів, — є однією з цілей нашого дослідження.

У цій роботі ми вивчимо особливості магнітного поглинання ультракоротких імпульсів наночастинками з розмірами як меншими, так і більшими за довжину вільного пробігу електрона. Зокрема ми дослідимо: а) енергію, яка поглинається від коротких лазерних імпульсів; б) її залежність від форми частинки, частоти несучої хвилі, тривалості падаючого імпульсу, розмірів частинки тощо.

Робота структурована так. У другій частині описано модель та вихідні принципи задачі. Третя — присвячена вивченню магнітного поглинання при феноменологічному й кінетичному підходах. У четвертій частині обговорено одержані результати і в п'ятій подано основні результати й висновки, отримані в роботі.

## II. МОДЕЛЬ ТА ВИХІДНІ ПРИНЦИПИ

Нехай на МН падає лазерний імпульс, електричне поле якого ми задамо у вигляді

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

де  $\Gamma$  — величина, обернена до тривалості лазерного імпульсу,  $\omega_0$  — несуча кругова частота ЕМ хвилі,  $|\mathbf{k}_0| = \omega_0/c$ ,  $\mathbf{E}_0$  має сенс максимального значення електричного поля в імпульсі. Крім електричної, поле лазерного імпульсу має також магнітну компоненту, яка зв'язана з електричним складником відповідним рівнянням Максвелла

$$\text{rot } \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = -\frac{1}{c} \frac{\partial}{\partial t} \mathbf{H}(\mathbf{r}, t). \quad (2)$$

Задавши  $\mathbf{E}(\mathbf{r}, t)$  у вигляді (1), установимо за допомогою (2), яким буде імпульс магнітного поля. Найпростіше цей зв'язок виглядатиме між фур'є-компонентами цих величин. Для електричного поля, наприклад, компонента Фур'є обчислюється за формулою

$$\begin{aligned} \mathbf{E}(\mathbf{r}, \omega) &= \int_{-\infty}^{\infty} \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) e^{i\omega t} dt = \frac{\sqrt{\pi}}{2\Gamma} \mathbf{E}_0 \\ &\times \left( e^{-\frac{(\omega - \omega_0)^2}{4\Gamma^2}} + e^{-\frac{(\omega + \omega_0)^2}{4\Gamma^2}} \right) e^{i\mathbf{k}_0 \mathbf{r}} \left( \frac{\omega}{\omega_0} \right). \end{aligned} \quad (3)$$

Виконавши фур'є-перетворення у (2) та скориставшись результатом інтегрування (3), знаходимо для напруженості магнітного поля величину

$$\begin{aligned} \mathbf{H}(\mathbf{r}, \omega) &= \frac{\sqrt{\pi}}{2\Gamma} (\mathbf{m} \times \mathbf{E}_0) \\ &\times \left( e^{-\frac{(\omega - \omega_0)^2}{4\Gamma^2}} + e^{-\frac{(\omega + \omega_0)^2}{4\Gamma^2}} \right) e^{i\mathbf{k}_0 \mathbf{r}} \left( \frac{\omega}{\omega_0} \right), \end{aligned} \quad (4)$$

де  $\mathbf{m} = \mathbf{k}_0/k_0$  — одиничний вектор, спрямований уздовж поширення ЕМ-хвилі,  $k_0 = \omega_0/c$ .

Електричне поле лазерного імпульсу породжує всередині МН *потенціальне* електричне поле  $\mathbf{E}_{\text{in}}(\mathbf{r}, t)$ , а магнітне поле індукує в частинці *вихрове* електричне поле  $\mathbf{E}_{\text{ed}}(\mathbf{r}, t)$ . Щоб знайти вираз для енергії, яку поглинає МН, потрібно знати внутрішні поля  $\mathbf{E}_{\text{in}}(\mathbf{r}, t)$  і  $\mathbf{E}_{\text{ed}}(\mathbf{r}, t)$ . Щоб їх визначити, звернімо увагу на ту особливість фур'є-компонент (3) і (4), яка пов'язана з їхньою залежністю від координати. Якщо характерний розмір наночастинки  $R$  такий, що

$$k_0 R \ll 1, \quad (5)$$

тобто довжина несучої хвилі значно більша від розміру МН, тоді координатною залежністю фур'є-компонент  $\mathbf{E}(\mathbf{r}, \omega)$  і  $\mathbf{H}(\mathbf{r}, \omega)$  в межах частинки можна знехтувати. А це означає, що при визначенні внутрішніх полів всередині МН за умови виконання нерівності (5) можна покласти фур'є-компоненти цих полів такими, якими вони були б у просторово однорідних полях

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}, \omega) \rightarrow \mathbf{E}(0, \omega) \quad \text{і} \quad \mathbf{H}(\mathbf{r}, \omega) \rightarrow \mathbf{H}(0, \omega). \quad (6)$$

Для асиметричної МН, що має, наприклад, форму еліпсоїда, це дає змогу нам записати внутрішнє електричне

$$[\mathbf{E}_{\text{in}}(\mathbf{r}, \omega)]_j \approx \frac{E_j^{(0)}(0, \omega)}{1 + L_j [\varepsilon(\omega) - 1]}, \quad (7)$$

та вихрове електричне поле

$$\begin{aligned} [\mathbf{E}_{\text{ed}}(\mathbf{r}, \omega)]_x &\approx i \frac{\omega}{c} \left( \frac{z}{R_z^2 + R_x^2} H_y^{(0)}(0, \omega) \right. \\ &\left. - \frac{y}{R_x^2 + R_y^2} H_z^{(0)}(0, \omega) \right) R_x^2, \end{aligned} \quad (8)$$

подібно, як у [13]. Решту компонент вихрового поля можна отримати з (8) циклічною перестановкою індексів. У формулах (7), (8)  $L_j$  — геометричні фактори (відомі також як коефіцієнти деполаризації [15],  $j = x, y, z$ ),  $\varepsilon(\omega) = \varepsilon'(\omega) + i\varepsilon''(\omega)$  — залежна від частоти комплексна діелектрична проникність частинки,  $R_x, R_y, R_z$  — півосі еліпсоїда в напрямках  $x, y$  і  $z$  відповідно. Лінійну залежність вихрового поля від координат легко зрозуміти, коли звернутися до рівняння (2), яке визначає це поле. Якщо зобразити у (2) фур'є-перетворення за часом, то праву частину цього рівняння, як видно з (4) і умови (5), можна вважати сталою, незалежною від координат величиною. Це означає, що  $\text{rot } \mathbf{E}_{\text{ed}}(\mathbf{r}, \omega) = \text{const}$ . А така рівність можлива тільки в єдиному випадку, коли

$$[\mathbf{E}_{\text{ed}}(\mathbf{r}, \omega)]_j = \sum_{k=1}^3 \alpha_{jk}(\omega) x_k, \quad (9)$$

тобто вихрове поле лінійно залежить від координат. Тут  $\alpha$  — деяка матриця, незалежна від  $\mathbf{r}$ , компоненти якої ми конкретизуємо далі.

Як бачимо з (7), (8) однорідне зовнішнє електричне поле індукує всередині еліпсоїдальної МН однорідне електричне потенціальне поле, тоді як однорідне

зовнішнє магнітне поле генерує всередині частинки координатно залежне вихрове поле. Внутрішні поля  $\mathbf{E}_{\text{in}}(\mathbf{r}, t)$  і  $\mathbf{E}_{\text{ed}}(\mathbf{r}, t)$  викликають в МН відповідні густини струмів  $\mathbf{j}_{\text{in}}(\mathbf{r}, t)$  і  $\mathbf{j}_{\text{ed}}(\mathbf{r}, t)$ . У результаті частинка поглинає енергію від ЕМ-поля падаючої лазерної хвилі. Повна енергія цього поглинання складається із суми електричного та магнітного поглинання. Електричне поглинання, як згадувалося, ми розглянули в роботі [14]. Нижче ми докладно зупинимося лише на особливостях поглинання ультракоротких лазерних імпульсів, зумовлених магнітним складником ЕМ-поля.

### III. МАГНІТНЕ ПОГЛИНАННЯ

Коли МН перебуває в полі монохроматичної ЕМ-хвилі і частота хвилі далека від плазмонного резонансу, то основну роль відіграватиме індивідуальний механізм поглинання. У цьому випадку, як ми показали в [12], залежно від частоти хвилі, її поляризації, розміру й форми МН домінувати може як електричне, так і магнітне поглинання. Однак якщо розміри сферичної частинки перевищують  $50 \text{ \AA}$ , то магнітне поглинання вже на частотах, менших від частоти відбиття електронів від протилежних стінок частинки, стає переважаючим для різних поляризацій падаючого світла.

В інтегральному вигляді енергію магнітного поглинання можна записати як

$$w_m = \int_{-\infty}^{\infty} dt W(t) = \frac{1}{2} \text{Re} \int_{-\infty}^{\infty} dt \times \int_V d\mathbf{r} \mathbf{j}_{\text{ed}}(\mathbf{r}, t) \mathbf{E}_{\text{ed}}^*(\mathbf{r}, t), \quad (10)$$

де інтегруємо по всьому об'єму частинки,  $W(t)$  — поглинута потужність. Опираючись на рівність

$$\int_{-\infty}^{\infty} \mathbf{j}_{\text{ed}}(\mathbf{r}, t) \mathbf{E}_{\text{ed}}^*(\mathbf{r}, t) dt = \int_{-\infty}^{\infty} \mathbf{j}_{\text{ed}}(\mathbf{r}, \omega) \mathbf{E}_{\text{ed}}^*(\mathbf{r}, \omega) \frac{d\omega}{2\pi},$$

яка впливає, зокрема, зі співвідношення Парсевалія для інтеграла Фур'є [16], можна подати (10) ще так:

$$w_m = \frac{1}{2} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{d\omega}{2\pi} \text{Re} \int_V d\mathbf{r} \mathbf{j}_{\text{ed}}(\mathbf{r}, \omega) \mathbf{E}_{\text{ed}}^*(\mathbf{r}, \omega). \quad (11)$$

Величина  $\mathbf{E}_{\text{ed}}(\mathbf{r}, \omega)$ , відповідно до (8), нам уже відома. Тепер залишається знайти фур'є-компоненту густини струмів  $\mathbf{j}_{\text{ed}}(\mathbf{r}, \omega)$ . У загальному випадку струм у точці  $\mathbf{r}$  частинки, спричинений вихровим полем  $\mathbf{E}_{\text{ed}}(\mathbf{r}, \omega)$ , можна записати як інтеграл по всіх швидкостях електронів

$$\mathbf{j}(\mathbf{r}, \omega) = 2e \left( \frac{m}{2\pi\hbar} \right)^3 \int_{-\infty}^{\infty} d^3v \mathbf{v} f_1(\mathbf{r}, \mathbf{v}, \omega), \quad (12)$$

де  $f_1(\mathbf{r}, \mathbf{v}, \omega)$  — фур'є-компонента нерівноважної функції розподілу, яку розглядають як додаток до рівноважної функції розподілу Фермі  $f_0(\varepsilon)$ , залежної лише від енергії електрона  $\varepsilon$ . Функцію  $f_1(\mathbf{r}, \mathbf{v}, \omega)$  шукають як розв'язок відповідного лінеаризованого кінетичного рівняння Больцмана. Як правило, воно записується для функції розподілу, залежної від часу (див., для прикладу, [13]). Якщо зробити фур'є-перетворення цього рівняння та взяти до уваги для полів розклад у Фур'є інтеграл (3), а також

$$f_1(\mathbf{r}, \mathbf{v}, \omega) = \int_{-\infty}^{\infty} f_1(\mathbf{r}, \mathbf{v}, t) e^{i\omega t} dt,$$

то в результаті для  $f_1$  одержуємо таке рівняння:

$$(\nu - i\omega) f_1(\mathbf{r}, \mathbf{v}, \omega) + \mathbf{v} \frac{\partial}{\partial \mathbf{r}} f_1(\mathbf{r}, \mathbf{v}, \omega) + e \mathbf{E}_{\text{ed}}(\mathbf{r}, \omega) \frac{\partial}{\partial \mathbf{p}} f_0(\varepsilon) = 0, \quad (13)$$

де  $\nu$  — частота об'ємних зіткнень електрона,  $\mathbf{p} = m \mathbf{v}$ . Рівняння (13) повинно бути доповнене ще відповідними граничними умовами. Такими умовами ми вибрали умови дифузного відбиття електронів від внутрішніх стінок частинки

$$f_1(\mathbf{r}, \mathbf{v}, \omega)|_S = 0, \quad v_n < 0. \quad (14)$$

У (14)  $v_n$  — нормальний до поверхні  $S$  складник швидкості. Обґрунтування таких граничних умов можна знайти, зокрема, в [12]. Задовольнити рівняння (13) і граничні умови (14) вдається завдяки переходу до деформованих змінних

$$x'_i = x_i \frac{R}{R_i}, \quad v'_j = v_j \frac{R}{R_j}.$$

У цих змінних еліпсоїд приймає форму рівної йому за об'ємом сфери з радіусом  $R$ . Тоді розв'язок рівняння (13) має вигляд

$$f_1(\mathbf{r}', \mathbf{v}', \omega) = -\frac{e}{R^2} \frac{\partial f_0}{\partial \varepsilon} \sum_{i,j=1}^3 \alpha_{ij}(\omega) v'_j R_j R_i \times \left( x'_i + v'_i \frac{\partial}{\partial(\nu - i\omega)} \right) \frac{1 - e^{-(\nu - i\omega) t'(\mathbf{r}', \mathbf{v}')}}{\nu - i\omega}, \quad (15)$$

де

$$t'(\mathbf{r}', \mathbf{v}') = \frac{1}{v'^2} [\mathbf{r}' \mathbf{v}' + \sqrt{(R^2 - r'^2) v'^2 + (\mathbf{r}' \mathbf{v}')^2}]. \quad (16)$$

Далі ми скористалися нульовим наближенням за малим відношенням  $k_B T / \varepsilon_F$ , коли можна похідну по енергії електрона замінити на

$$\frac{\partial f_0}{\partial \varepsilon} \rightarrow -\delta(\varepsilon - \varepsilon_F), \quad (17)$$

де  $\varepsilon_F$  — енергія Фермі. Діагональні компоненти матриці  $\alpha_{jj} = 0$ , а недіагональні виражаються через відповідні компоненти магнітного поля. Наприклад,

$$\alpha_{xy}(\omega) = -i\frac{\omega}{c} \frac{R_x^2}{R_x^2 + R_y^2} H_z^{(0)}(0, \omega). \quad (18)$$

Дві компоненти матриці  $\alpha$  можна одержати шляхом циклічної перестановки індексів у (18). Інші три компоненти знаходимо, скориставшись косиметричністю  $\alpha$ , тобто взявши до уваги властивість  $\alpha_{xy}(\omega) = -\alpha_{yx}(\omega)$ .

Для знаходження енергії магнітного поглинання, отже, потрібно виконати поетапно ряд таких кроків: підставити знайдену функцію  $f_1(\mathbf{r}, \mathbf{v}, t)$  в (12) й отримати фур'є-компоненти густини струму. А далі, беручи до уваги, що фур'є-компоненти внутрішнього поля задаються виразом (8), підставити знайдені фур'є-компоненти густини струму й поля в (11).

Обчислення енергії поглинання можна провести, оминаючи описану процедуру, якщо при знаходженні струму користуватися феноменологічним підходом. Під таким матимемо на увазі підхід, коли поглинання частинки можна записати в загальному вигляді через дійсну й уявну частини діелектричної проникності й немає потреби розв'язувати кінетичне рівняння (13) з граничними умовами (14). Продемонструємо його.

#### А. Феноменологічний підхід

Нехай розмір частинки буде більший від довжини вільного пробігу електрона в ній. Тоді ми можемо виразити вихровий струм через вихрове поле як  $\mathbf{j}_{\text{ed}}(\omega) = \sigma_m(\omega) \mathbf{E}_{\text{ed}}(\omega)$  і вираз (11) перепишемо у вигляді

$$w_m = \frac{1}{2} \sum_{j=1}^3 \int_{-\infty}^{\infty} \sigma_m(\omega) \frac{d\omega}{2\pi} \text{Re} \int_V |\mathbf{E}_{\text{ed}}^j(\mathbf{r}, \omega)|^2 d\mathbf{r}. \quad (19)$$

Інтегрування по об'єму еліпсоїда  $V$

$$\int_V d\mathbf{r} \rightarrow 8 \int_0^{R_x} dx \int_0^{R_y} dy \int_0^{R_z} dz$$

можна замінити інтегруванням по сфері еквівалентного об'єму. Тоді легко показати, наприклад, що

$$\begin{aligned} \int_V x^2 d\mathbf{r} &= V \frac{R_x^2}{5}, & \int_V y^2 d\mathbf{r} &= V \frac{R_y^2}{5}, & \int_V z^2 d\mathbf{r} &= V \frac{R_z^2}{5}, \\ \int_V xy d\mathbf{r} &= \int_V yz d\mathbf{r} = \int_V zx d\mathbf{r} = 0. \end{aligned} \quad (20)$$

Обмежимося далі розглядом металевих наночастинок, що мають форму сфероїда ( $R_x = R_y \equiv R_{\perp}$ ,  $R_z \equiv R_{\parallel}$ ). Із використанням (8) та (20) сума інтегралів по об'єму наночастинок буде

$$\begin{aligned} \text{Re} \sum_{j=1}^3 \int_V |\mathbf{E}_{\text{ed}}^j(\mathbf{r}, \omega)|^2 d\mathbf{r} &= \frac{V}{5} \left(\frac{\omega}{c}\right)^2 \\ &\times \left( \frac{R_{\perp}^2}{2} \mathbf{H}_{\parallel}^2(0, \omega) + \frac{R_{\parallel}^2 R_{\perp}^2}{R_{\parallel}^2 + R_{\perp}^2} \mathbf{H}_{\perp}^2(0, \omega) \right). \end{aligned} \quad (21)$$

Тут  $\mathbf{H}_{\parallel}(0, \omega)$  — напруженість магнітного поля вздовж, а  $\mathbf{H}_{\perp}(0, \omega)$  — уперек осі обертання сфероїда. Звернімо увагу, що магнітне поглинання залежить від поляризації магнітного поля подібно до того, як електричне поглинання залежить від поляризації електричного поля [14]. Вираз (21), однак, можна узагальнити на випадок довільної системи координат, якщо компоненти поля представити як:

$$\mathbf{H}_{\perp}^2 = \mathbf{H}^2 - \mathbf{H}_{\parallel}^2, \quad \mathbf{H}_{\parallel} = (\mathbf{H} \cdot \mathbf{n})\mathbf{n}, \quad (22)$$

де  $\mathbf{n}$  — одиничний вектор, спрямований уздовж осі обертання сфероїда. Тоді, враховуючи (21), вираз для (19) можна одержати у вигляді

$$\begin{aligned} w_m &= \frac{V}{10} \frac{R_{\parallel}^2 R_{\perp}^2}{R_{\parallel}^2 + R_{\perp}^2} \int_{-\infty}^{\infty} \sigma_m(\omega) \left(\frac{\omega}{c}\right)^2 \\ &\times \left( \mathbf{H}^2(0, \omega) - \frac{1}{2} \left(1 - \frac{R_{\perp}^2}{R_{\parallel}^2}\right) (\mathbf{H}(0, \omega) \mathbf{n})^2 \right) \frac{d\omega}{2\pi}. \end{aligned} \quad (23)$$

Поле  $\mathbf{H}(0, \omega)$  в (23) задається виразом (4), а залежністю  $\sigma_m(\omega)$  для металевої частинки у феноменологічному випадку є

$$\sigma_m(\omega) = \frac{\nu}{4\pi} \frac{\omega_{\text{pl}}^2}{\nu^2 + \omega^2}, \quad (24)$$

де  $\omega_{\text{pl}} = 4\pi n e^2 / m$  — частота плазмових коливань електронів у металі,  $n$  — їх концентрація.

Далі проведимо обчислення для конкретних поляризацій магнітної хвилі відносно наночастинок. Розглянемо два наступні випадки:

I). Спрямуємо магнітне поле вперек осі сфероїда. Тоді другий доданок під інтегралом у (23) зникає, і, підставивши (4) і (24) в (23), одержимо для поглинутої енергії вираз

$$\begin{aligned} w_{m\perp} &= \frac{V}{160} \frac{\nu \omega_{\text{pl}}^2}{\Gamma^2} \frac{R_{\parallel}^2 R_{\perp}^2}{R_{\parallel}^2 + R_{\perp}^2} |\mathbf{E}_0|^2 \\ &\times \text{Re} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{\omega^2}{\nu^2 + \omega^2} f(\omega) \frac{d\omega}{2\pi}, \end{aligned} \quad (25)$$

де

$$f(\omega) = \left( \exp \left[ -\frac{(\omega - \omega_0)^2}{4\Gamma^2} \right] + \exp \left[ -\frac{(\omega + \omega_0)^2}{4\Gamma^2} \right] \right)^2. \quad (26)$$

В аналітичному вигляді виконати точно інтегрування в (25) не вдається. Однак, користуючись тим, що частота об'ємних зіткнень  $\nu \approx 10^{13} \text{c}^{-1}$  є величиною малою порівняно з частотами  $\omega \approx \omega_0 \sim 10^{15} \text{c}^{-1}$ , які забезпечують основний внесок в інтеграл, нею можна знехтувати під інтегралом у (25). Тоді приходимо до подвоєного інтеграла

$$I_\nu = \int_\nu^\infty f(\omega) d\omega. \quad (27)$$

Він обчислюється аналітично, навіть у вказаних межах. Неважко, однак, переконатися в тому, що результат інтегрування практично не зміниться, якщо нижню межу інтегрування в  $I_\nu$  опустити до нуля. Це означає, що інтеграл у межах  $[0, \nu]$

$$I = \int_0^\nu f(\omega) d\omega \ll I_\nu \quad (28)$$

є значно меншим порівняно з  $I_\nu$  і його можна відкинути. Таким чином, для інтеграла в межах  $[0, \infty]$  знаходимо:

$$\begin{aligned} & \int_0^\infty \left( \exp \left[ -\frac{(\omega - \omega_0)^2}{4\Gamma^2} \right] + \exp \left[ -\frac{(\omega + \omega_0)^2}{4\Gamma^2} \right] \right)^2 d\omega \\ &= \sqrt{2\pi} \Gamma \left( 1 + \exp \left[ -\frac{\omega_0^2}{2\Gamma^2} \right] \right), \end{aligned} \quad (29)$$

і в результаті

$$\begin{aligned} w_{m\perp} &= \frac{1}{80} \frac{V}{\sqrt{2\pi}} \frac{\nu}{\Gamma} \left( \frac{\omega_{pl} R_\perp}{c} \right)^2 \left( \frac{R_\parallel^2}{R_\parallel^2 + R_\perp^2} \right) \\ &\times \left( 1 + e^{-\frac{\omega_0^2}{2\Gamma^2}} \right) |\mathbf{E}_0|^2, \end{aligned} \quad (30)$$

за умови, що  $\omega \gg \nu$ .

II). Тепер перейдімо до поляризації ЕМ-хвилі, у якій магнітне поле спрямоване вздовж осі сфероїда. Тоді скалярний добуток у другому доданку під інтегралом у (23)  $\mathbf{H}(0, \omega) \mathbf{n} = |\mathbf{H}(0, \omega)|$  і, підставивши (4) у (23), знаходимо вираз

$$w_{m\parallel} = \frac{V}{80} \frac{\pi}{\Gamma^2} \left( \frac{R_\perp}{c} \right)^2 |\mathbf{E}_0|^2 \operatorname{Re} \int_{-\infty}^\infty \sigma(\omega) f(\omega) \omega^2 \frac{d\omega}{2\pi}. \quad (31)$$

Використовуючи (24) та результат інтегрування (29), остаточно приходимо до такого виразу для поглинутої в цій поляризації енергії

$$w_{m\parallel} = \frac{1}{160} \frac{V}{\sqrt{2\pi}} \frac{\nu}{\Gamma} \left( \frac{\omega_{pl} R_\perp}{c} \right)^2 \left( 1 + e^{-\frac{\omega_0^2}{2\Gamma^2}} \right) |\mathbf{E}_0|^2, \quad (32)$$

за умови, що  $\omega \gg \nu$ . Квадрат амплітуди електричного поля в попередніх виразах й далі можна б формально замінити  $|\mathbf{E}_0|^2 \rightarrow |\mathbf{H}_0|^2$ , оскільки максимальне значення магнітного поля в імпульсі можна було б задавати подібно до (1), пам'ятаючи про зв'язок між полями (2).

Якщо вважати, що на наночастинку падає плоска ЕМ-хвиля, тобто хвиля (1) з  $\Gamma \rightarrow 0$ , то вирази (30), (32) асимптотично, з точністю до сталої  $\sqrt{\pi}/2/2$  (зумовленої відмінністю у формі імпульсів<sup>1</sup>), переходять у відомі з наших попередніх обчислень [12,13] результати для поглинутої потужності  $W_m = w_m \Gamma$ .

## В. Кінетичний підхід

Коли розмір частинки є менший від довжини вільного пробігу електрона в наночастинці, то феноменологічним підходом користуватися не можна і його необхідно замінити кінетичним підходом. Зауважимо, що останній дає змогу також отримати правильні результати й для випадку, коли розмір частинки більший від довжини вільного пробігу. При кінетичному описі системи струм  $\mathbf{j}_{ed}(\omega)$ , що входить у (11), необхідно обчислювати за формулою (12). Використовуючи знайдену нерівноважну функцію розподілу (15), одержуємо

$$\begin{aligned} w_m &= \frac{2}{m} \frac{e^2}{R^4} \left( \frac{m}{2\pi \hbar} \right)^3 \operatorname{Re} \sum_{ijkl} R_i R_j R_k R_l \int_{-\infty}^\infty \frac{\alpha_{kj}^*(\omega) \alpha_{il}(\omega) d\omega}{\nu - i\omega} \frac{d\omega}{2\pi} \\ &\times \int_{-\infty}^\infty v'_j v'_i \delta(v^2 - v_F^2) d^3 v \int_{\mathbf{v}'} x'_k x'_i \left( 1 - e^{-(\nu - i\omega)t'(r', v')} \right) dr', \end{aligned} \quad (33)$$

де  $v_F$  — швидкість електронів на сфері Фермі. У (33) ми опустили доданок, пов'язаний з другим членом (з  $v'_i$ ) під сумою в (15). Неважко показати, що при інтегруванні по координатах електронів внесок цього

члена дорівнюватиме нулеві, оскільки він парний по координатах, а вихрове поле — непарна функція координат. Інтегрування ж по координатах у (33), пов'язане з першим членом під сумою в (15), можна викона-

<sup>1</sup>Множник 1/2 виникає від того, що поле ЕМ-хвилі ми задавали [12] у вигляді  $\mathbf{E}^{(0)} \exp[i(\omega t - \mathbf{k}\mathbf{r})]$ , а в цій статті при  $\Gamma \rightarrow 0$ , згідно з (1), маємо  $\mathbf{E}^{(0)} \cos(\omega_0 t - \mathbf{k}\mathbf{r})$ . Інший множник  $\sqrt{\pi}/2$  зумовлений тим, що ми маємо тут справу з гауссоподібним, а не прямокутним імпульсом.

ти точно. Не наводячи деталей обчислень, які можна почерпнути в [13], випишемо остаточний результат

$$\int_{V'} x'_k x'_i \left(1 - e^{-(\nu-i\omega)t'(r',v')}\right) dr' \quad (34)$$

$$= \pi R^5 \left[ 2\psi_3 \frac{v'_k v'_i}{v'^2} + \frac{\psi_1}{2} \left( \delta_{ki} - 3 \frac{v'_k v'_i}{v'^2} \right) \right].$$

Тут

$$\psi_1(v', \omega) = \frac{8}{15} - \frac{1}{q} + \frac{4}{q^3} - \frac{24}{q^5} + e^{-q} \frac{8}{q^3} \left(1 + \frac{3}{q} + \frac{3}{q^2}\right),$$

$$\psi_3(v', \omega) = \frac{2}{5} - \frac{1}{q} + \frac{8}{3q^2} - \frac{6}{q^3} + \frac{32}{q^5}$$

$$- e^{-q} \frac{2}{q^2} \left(1 + \frac{5}{q} + \frac{16}{q^2} + \frac{16}{q^3}\right),$$

$$q = (\nu - i\omega) \frac{2R}{v'}. \quad (35)$$

Наступне інтегрування в просторі швидкостей у загальному випадку провести в аналітичному вигляді не вдається. Його можна виконати лише за умови, якщо частотний інтервал  $[-\infty, \infty]$  умовно розбити на дві частини

$$\int_{-\infty}^{\infty} \Xi(\omega) d\omega = 2 \int_0^{\nu_S} \Xi_{LF}(\omega) d\omega + 2 \int_{\nu_S}^{\infty} \Xi_{HF}(\omega) d\omega, \quad (36)$$

одна з яких буде більшою, а інша меншою від деякої частоти, яка відповідає частоті зіткнень електрона з поверхнею частинки

$$\nu_s = v_F/(2R). \quad (37)$$

Двійки в (36) виникли внаслідок того, що підінтегральні вирази для  $\Xi$  повинні бути парною функцією від  $\omega$ . Випадок з  $\omega < \nu_S$  далі називатимемо низькочастотним (LF), а випадок з  $\omega > \nu_S$  — високочастотним (HF). Розгляньмо спочатку останній. В його основі лежить застосування наближень

$$\operatorname{Re} \left\{ \frac{1}{\nu - i\omega} \psi_1(v', \omega) \right\} \approx \frac{v'}{2R\omega^2}, \quad (38)$$

$$\operatorname{Re} \left\{ \frac{1}{\nu - i\omega} \psi_2(v', \omega) \right\} \approx \frac{v'}{8R\omega^2},$$

де  $\psi_2(v', \omega) = \psi_3(v', \omega) - \frac{3}{4}\psi_1(v', \omega)$ .

Уникаючи повторення обчислень, деталі яких можна знайти в [12,13], з урахуванням (22) випишемо остаточний результат, який можна одержати після інтегрувань по всіх швидкостях електрона

$$w_{m,HF} = \frac{9}{64} \frac{V \omega_{pl}^2}{4\pi c^2} v_F R_{\perp} \int_{\nu_S}^{\infty} \left\{ \eta_m^H(e_s) \left( \frac{R_{\parallel}^2}{R_{\parallel}^2 + R_{\perp}^2} \right)^2 |\mathbf{H}(0, \omega)|^2 \right.$$

$$\left. + \left[ \rho_H(e_s) - \eta_m^H(e_s) \left( \frac{R_{\parallel}^2}{R_{\parallel}^2 + R_{\perp}^2} \right)^2 \right] |\mathbf{H}(0, \omega) \mathbf{n}|^2 \right\} \frac{d\omega}{2\pi}. \quad (39)$$

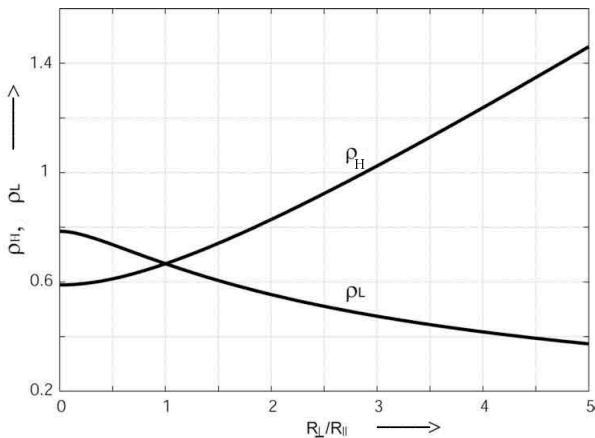


Рис. 1. Залежність функції  $\rho_H$  від форми частинки, що задається співвідношенням  $R_{\perp}/R_{\parallel}$  півосей сфероїда для низьких ( $\omega < v_F/(2R)$ ) і високих ( $\omega > v_F/(2R)$ ) частот.

У виразі (39)  $\rho_H(e_s)$  і  $\eta_m^H(e_s)$  — функції, залежні лише від ексцентриситету сфероїда  $e_s$ . Їх графічний вигляд разом з іншими двома функціями подано нижче на рис. 1, 2. Із виразу (39) бачимо, що у високочастотному випадку частотна залежність підінтегрального виразу (при довільній поляризації) міститься лише в амплітуді магнітного поля. Практично це означає, що ми можемо скористатися результатом інтегрування, одержаним при феноменологічному підході. Якщо там нижньою межею була величина  $\nu$ , то тут цю роль виконуватиме  $\nu_S$ . Незавжди переконавшись, що у випадку з  $\nu_S$  можна також поширити нижню межу інтегрування до нуля. Отже, використовуючи вирази (4) і (29) в обчисленні (39), енергію магнітної компоненти ЕМ-хвилі лазера в поляризації (I), коли вектор магнітної компоненти спрямованийний уперек осі сфероїда, остаточно можна одержати у вигляді

$$w_{m\perp HF} = \frac{9}{64} \frac{V}{\sqrt{2\pi}} \frac{\omega_{pl}^2}{16 c^2} \frac{v_F}{\Gamma} \left(1 + e^{-\frac{\omega_0^2}{2\Gamma^2}}\right) \times \eta_m^H(e_s) R_{\perp} \left(\frac{R_{\parallel}^2}{R_{\parallel}^2 + R_{\perp}^2}\right)^2 |\mathbf{E}_0|^2 \quad (40)$$

і в поляризації (II), коли, навпаки, вектор магнітної компоненти спрямований — уздовж цієї осі, як:

$$w_{m\parallel HF} = \frac{9}{64} \frac{V}{\sqrt{2\pi}} \frac{\omega_{pl}^2}{16 c^2} \frac{v_F}{\Gamma} \left(1 + e^{-\frac{\omega_0^2}{2\Gamma^2}}\right) \times \rho_H(e_s) R_{\perp} |\mathbf{E}_0|^2. \quad (41)$$

Вирази (40) і (41) для сферичної частинки стають однаковими, оскільки  $\eta_m^H(0) = 4\rho_H(0)$ . Крім цього, якщо врахувати, що потужність поглинутої енергії

$W_m = w_m \Gamma$ , де  $w_m$  задають (40) чи (41), і спрямувати  $\Gamma \rightarrow 0$  у виразах для  $W_m$ , то вони з точністю до сталої  $\sqrt{\pi}/2/2$  переходять у відомі з наших попередніх обчислень [12, 13] результати для плоскої хвилі.

Залишається ще розглянути низькочастотний випадок. При обчисленні (33) у цьому випадку застосовані наближення

$$\operatorname{Re}\left\{\frac{1}{\nu - i\omega} \psi_1(\nu', \omega)\right\} \approx \frac{R}{3\nu'}, \quad (42)$$

$$\operatorname{Re}\left\{\frac{1}{\nu - i\omega} \psi_2(\nu', \omega)\right\} \approx \frac{R}{36\nu'}.$$

Далі процедура нескладних, але громіздких обчислень приводить нас до такого результату:

$$w_{m LF} = \frac{3}{32} V \frac{\omega_{pl}^2}{4\pi c^2} \frac{R_{\perp}^3}{v_F} \int_0^{\nu_s} \omega^2 \left\{ \eta_m^L(e_s) \left(\frac{R_{\parallel}^2}{R_{\parallel}^2 + R_{\perp}^2}\right)^2 |\mathbf{H}(0, \omega)|^2 + \left[ \rho_L(e_s) - \eta_m^L(e_s) \left(\frac{R_{\parallel}^2}{R_{\parallel}^2 + R_{\perp}^2}\right)^2 \right] |\mathbf{H}(0, \omega) \mathbf{n}|^2 \right\} \frac{d\omega}{2\pi}, \quad (43)$$

де  $\rho_L(e_s)$  і  $\eta_m^L(e_s)$  — деякі функції, залежні від ексцентриситету сфероїда  $e_s$  (їх аналітичний вигляд див. [12]). На рис. 1, 2 показано хід цих функцій разом із попередніми двома  $\rho_H(e_s)$  і  $\eta_m^H(e_s)$  залежно від форми МН, що задається співвідношенням  $R_{\perp}/R_{\parallel}$  півосей сфероїда. Для сферичної частинки  $\rho_L(0) = \rho_H(0) = 2/3$ , а  $\eta_m^L(0) = \eta_m^H(0) = 8/3$ .

При обчисленні (43) необхідно знайти інтеграл

$$I_L = \int_0^{\nu_s} \omega^2 f(\omega) d\omega. \quad (44)$$

Він обчислюється аналітично, його значення подано нижче в додатку. Не важко, однак, перекоонатися, що подібно до інтеграла  $I$  в (28), результат буде таким же і у випадку, коли підінтегральна функція має вигляд такий, як в  $I_L$ , тобто можна одержати, що

$$I_L \ll I_{\nu_s}. \quad (45)$$

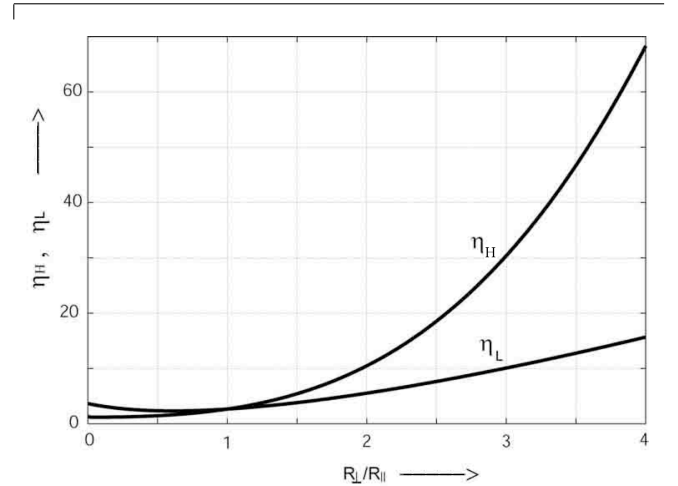


Рис. 2. Залежність функції  $\eta_H$  від форми частинки, що задається співвідношенням  $R_{\perp}/R_{\parallel}$  півосей сфероїда для низьких ( $\omega < v_F/(2R)$ ) і високих ( $\omega > v_F/(2R)$ ) частот.

Це означає, що в сумі (36) інтегралом  $I_L$  можна знехтувати. У такому разі для довільного кута  $\theta$  між напрямком магнітного поля і віссю обертання сфероїда остаточно знаходимо

$$w_{m S} = w_{m LF} + w_{m HF} = \frac{9}{128} \frac{V}{\sqrt{2\pi}} \frac{\omega_{pl}^2}{8 c^2} \frac{v_F}{\Gamma} \left(1 + e^{-\frac{\omega_0^2}{2\Gamma^2}}\right) R_{\perp} \times \left[ \rho_H(e_s) \sin^2 \theta + \eta_m^H(e_s) \left(\frac{R_{\parallel}^2}{R_{\parallel}^2 + R_{\perp}^2}\right)^2 \cos^2 \theta \right] |\mathbf{E}_0|^2. \quad (46)$$

Одержані у феноменологічному випадку результати (30), (32) переходять для сфероїдальної частинки в результати (40), (41) чи (46), одержані в кінетичному підході, якщо провести формальну заміну:

$$\begin{aligned} \nu &\rightarrow \frac{45}{64} \frac{v_F}{R_{\perp}} \left( \frac{R_{\parallel}^2}{R_{\parallel}^2 + R_{\perp}^2} \right) \eta_m^H, \quad \text{для } \perp\text{-поляризації}, \\ \nu &\rightarrow \frac{45}{32} \frac{v_F}{R_{\perp}} \rho_H, \quad \text{для } \parallel\text{-поляризації} \end{aligned} \quad (47)$$

при спільній умові  $\omega \gg \nu$ . Очевидно, у випадку сферичної частинки така заміна виглядатиме:

$$\nu \rightarrow \frac{15}{16} \frac{v_F}{R}, \quad \text{при умові, що } \omega \gg \nu. \quad (48)$$

#### IV. ОБГОВОРЕННЯ РЕЗУЛЬТАТІВ

Проілюструємо одержані вище аналітичні вирази графічно. Будемо обчислювати величину

$$S_m = \frac{w_m}{\frac{|\mathbf{E}_0|^2}{8\pi} s_{\omega} V} \quad (49)$$

— відношення енергії, що поглинається одиницею об'єму МН, до енергії падаючої хвилі, нормованої на безрозмірний фактор  $s_{\omega}$ , величина якого залежить від частотної ділянки. Він вибраний як відношення енергій магнітного й електричного поглинання для сферичної частинки на частотах  $\nu \ll \omega \ll \omega_{\text{pl}}$ . Згідно з [12], для сферичної частинки його можна знайти у вигляді

$$s_{\omega} \equiv s_{fn} \approx \frac{1}{90} \left( \frac{\omega_{\text{pl}} R}{c} \right)^2 \left( \frac{\omega_{\text{pl}}}{\omega_0} \right)^2 \quad (50)$$

чи

$$s_{\omega} \equiv s_{\text{HF}} \approx \frac{5}{4} s_{fn},$$

відповідно для феноменологічного й HF-випадків.

Вивчаючи залежність оптичних властивостей наночастинки від її форми, є сенс порівнювати між собою поглинання різних за формою, але однакових за об'ємом частинок. Зміну форми частинки ми характеризуємо відношенням радіусів  $R_{\perp}/R_{\parallel}$ . Умова сталості об'єму частинки ( $V = \frac{4\pi}{3} R_{\perp}^2 R_{\parallel} = \text{const}$ ) при заданому відношення  $R_{\perp}/R_{\parallel}$  визначає значення  $R_{\perp}$  і  $R_{\parallel}$ . Наприклад,

$$R_{\perp} = R \left( \frac{R_{\perp}}{R_{\parallel}} \right)^{1/3}, \quad (51)$$

де  $R$  — радіус сфери еквівалентного об'єму.

Дослідимо спочатку залежність  $S_m$  від форми частинки. На рис. 3, 4 для різних поляризацій ЕМ-хвилі зображено залежність  $S_m$  (на частоті поверхневого 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 для різних поляризацій проводилися з використанням формули (49), при концентрації

електронів у частинці  $5 \times 10^{22} \text{ см}^{-3}$ ,  $\omega_p \approx 1.26 \times 10^{16} \text{ с}^{-1}$ ,  $\nu = 10^{13} \text{ с}^{-1}$  та  $v_F \approx 1.32 \times 10^8 \text{ см/с}$ . Криві 1–3 відповідають різній тривалості падаючого імпульсу, тоді як трикутниками відображено хід феноменологічних залежностей, побудованих на основі формул (30), (32). Порівнюючи криві 1–3, переконаємося, що більшою мірою поглинається енергія лазерних імпульсів зі все більшою їх тривалістю. При цьому при поляризації магнітного поля вздовж осі обертання МН ( $\parallel$ -поляризації) поглинання наростає зі зростанням сплюснутості частинки (рис. 4), тоді як для поперечної поляризації магнітного поля ( $\perp$ -поляризації), поглинання сягає максимуму при певних значеннях співвідношення  $R_{\perp}/R_{\parallel}$ . Цей максимум у феноменологічному випадку досягається для частинок витягнутої форми при  $R_{\perp}/R_{\parallel} = 1/\sqrt{2}$ , а в кінетичному — при  $R_{\perp}/R_{\parallel} \approx 7/15$ . Якщо порівняти для однакової тривалості імпульсу в  $\perp$ -поляризації величини поглинання в максимумі, які можна одержати при феноменологічному й кінетичному підходах з формул (30) і (40), то можна знайти

$$\frac{w_{m\perp, \text{HF}}}{w_{m\perp}} \Big|_{\text{max}} \approx \frac{4}{5} \left( \frac{v_F}{\nu R} \right). \quad (52)$$

Із (52) випливає, що це відношення зростає зі зменшенням радіуса частинки і не залежить від  $\Gamma$ . Для МН з радіусом, наприклад, 100 Å бачимо (пор. криві 3 і позначену трикутниками на рис. 3), що поглинання в кінетичному випадку майже на порядок більше.

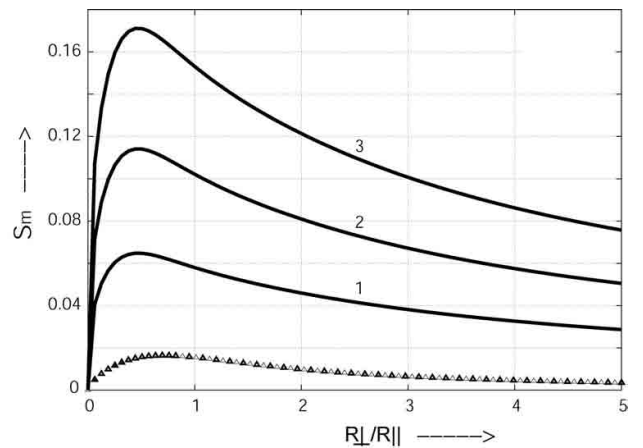


Рис. 3. Залежність енергії поглинутої сфероїдальною металевією наночастинкою при поперечній ( $\perp$ ) до її осі обертання поляризації магнітного поля від ступеня сплюснутості чи витягнутості сфероїда. Криві побудовано для частинки, об'єм якої дорівнює об'єму сферичної частинки з радіусом  $R = 100 \text{ Å}$  на частоті плазмонного резонансу  $\omega_0 = \Omega$  при різних  $\Gamma$ :  $3.64 \cdot 10^{15} \text{ с}^{-1}$  (крива 1),  $1.82 \times 10^{15} \text{ с}^{-1}$  (2),  $1.215 \times 10^{15} \text{ с}^{-1}$  (3). Трикутниками подано хід феноменологічної залежності при  $\Gamma = 1.215 \times 10^{15} \text{ с}^{-1}$ .



Зі збільшенням сплюснутості МН величина поглинання спадає у  $\perp$ -поляризації й зростає — при  $\parallel$ -поляризації магнітного поля. Причиною тут є факт, що кількість замкнених орбіт електрона зі зростанням витягнутості частинки збільшується при  $\parallel$ - і спадає при  $\perp$ -поляризації магнітного поля.

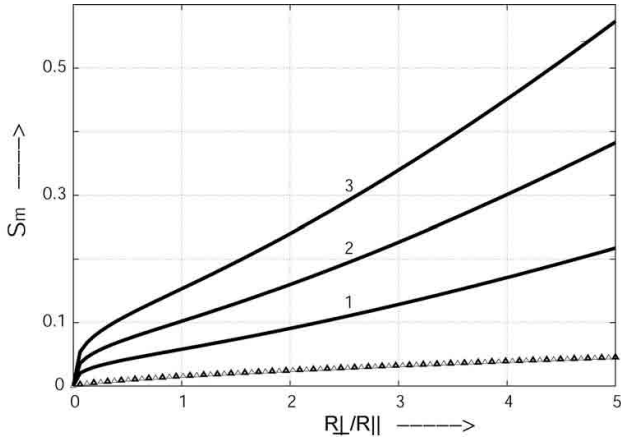


Рис. 4. Те саме, що й на рис. 3 для  $\parallel$ -поляризації магнітного поля.

На відміну від електричного поглинання, з відхиленням несучої частоти від частоти поверхневого плазмона у сферичній частинці в залежності поглинутої енергії від відношення  $R_{\perp}/R_{\parallel}$  не відбувається ні зміщення максимуму (одержаного вище у  $\perp$ -поляризації), ні з'яви інших максимумів, пов'язаних із формою частинки. Відбувається лише зростання інтенсивності поглинання (порівняно з проілюстрованим вище випадком), якщо несуча частота менша від резонансної ( $\omega_0 < \Omega$ ), та її збереження як сталої величини при частотах більших від резонансної ( $\omega_0 > \Omega$ ). Цей факт спостерігаємо для обох поляризацій як при феноменологічному, так і у кінетичному описах процесу. Проте залежно від тривалості падаючого імпульсу наявна певна специфіка. Зі зростанням тривалості імпульсу при різних несучих частотах інтенсивність поглинання зростає в обох досліджуваних тут поляризаціях. При цьому на частотах  $\omega_0 \ll \Omega$  це зростання відбувається стрімкіше. Детальніше це можна побачити на рис. 5, де зображена для сферичної МЧ залежність відношення енергій поглинання від співвідношення  $\Gamma/\omega_0$  для феноменологічного й кінетичного випадків. Суцільна крива стосується результату, одержаного для сферичної МН в кінетичному підході, а трикутниками показано хід поглинання — при феноменологічному. Лівостороннє обмеження по осі абсцис пов'язане з тим очевидним фактом, що просторовий розмір імпульсу  $c/\Gamma$  не повинен перевищувати довжини несучої хвилі  $\lambda_0$  у вакуумі:  $\Gamma/\omega_0 \geq 1/(2\pi) \approx 0.16$ .

Поглинання сферичними частинками, очевидно, не залежить від поляризації магнітного поля. На відміну від чого, поглинання в несферичних частинках суттєво залежить від поляризації магнітного поля щодо частинки. Так, для сфероїдальних МН при  $\perp$ -поляризації поля відносно осі обертання сфероїда магнітне поглинання (порівняно до частинки сферич-

ної форми) зростає у витягнутих і падає — в сплюснутих частинках такого ж об'єму. Поглинання, одержане в цій поляризації при феноменологічному описі процесу менше, ніж у сферичній частинці як для витягнутих, так і для сплюснутих частинки. При цьому найменшим воно в у частинках сплюснутої форми. У випадку ж  $\parallel$ -поляризації все навпаки: порівняно зі сферичними МН помітно зростає поглинання в сплюснутих і падає — у витягнутих МН. Така ж тенденція спостерігається й при феноменологічному підході.

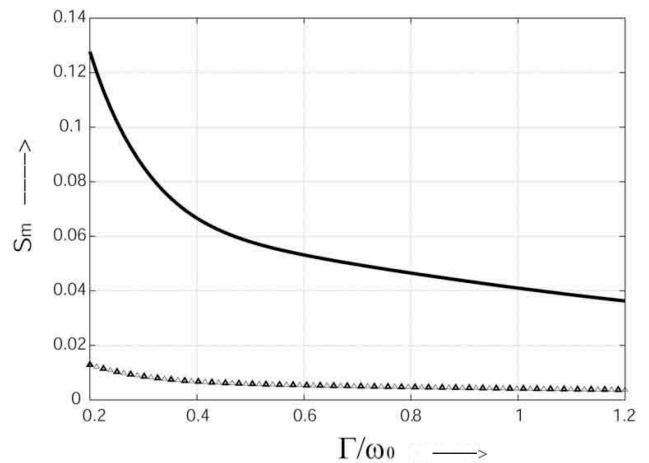


Рис. 5. Залежність енергії поглинутої сферичною МН при поперечній ( $\perp$ ) до її осі обертання поляризації магнітного поля від відношення  $\Gamma/\omega_0$ . Криві побудовано для частинки, об'єм якої дорівнює об'єму сферичної частинки з радіусом  $R = 100 \text{ \AA}$  на частоті плазмонного резонансу  $\omega_0 = \Omega$ . Трикутниками подано хід феноменологічної залежності.

Якщо вибрати наночастинку несферичної форми з фіксованим відношенням  $R_{\perp}/R_{\parallel}$  й змінювати лише величину несучої частоти поля, що падає на частинку в різних поляризаціях, то можна виявити (рис. 6) таке. В МН витягнутої форми ( $R_{\perp}/R_{\parallel} < 1$ ) зі зростанням тривалості падаючого лазерного імпульсу в області  $\omega_0 \ll \Omega$  поглинання енергії зростає і не відбувається розщеплення піка поглинання на два по різні боки від резонансної для сферичної частинки частоти  $\Omega$ , як це спостерігалось в електричних полях при значеннях  $\Gamma$ , що перевищують деяку межу величину [14]. При малих відношеннях  $\omega_0/\Omega$  криві 1–4, зростаючи, досягають найбільшого значення при найменшій частоті  $\omega_0 = \nu_S$ . Порівнюючи між собою криві 1 і 2 та 3 і 4 для імпульсів однакової тривалості, але різної поляризації, бачимо, що швидше зростання поглинання енергії в МН зі збільшенням несучої частоти відбувається при  $\perp$ -поляризації магнітного поля. При цьому імпульси більшої тривалості (з малим  $\Gamma$ ) поглинаються інтенсивніше при найнижчих частотах несучої хвилі.

Для сплюснутих частинки, навпаки, зростання поглинання енергії в МН зі зменшенням несучої частоти

**V. ВИСНОВКИ**

ти відбувається швидше при  $\parallel$ -поляризації магнітного поля, ніж при його  $\perp$ -поляризації. При цьому імпульси більшої тривалості поглинаються інтенсивніше в обох поляризаціях. Хід частотних залежностей, які можна одержати при феноменологічному підході у  $\parallel$ - і  $\perp$ -поляризаціях, відображені в нижній частині рисунка.

Таким чином, порівняно зі сферичними сфероїдальні витягнуті або сплюснуті МН можуть поглинати енергію ультракоротких лазерних імпульсів сильніше або слабше, залежно від орієнтації магнітного поля відносно осі обертання сфероїда.

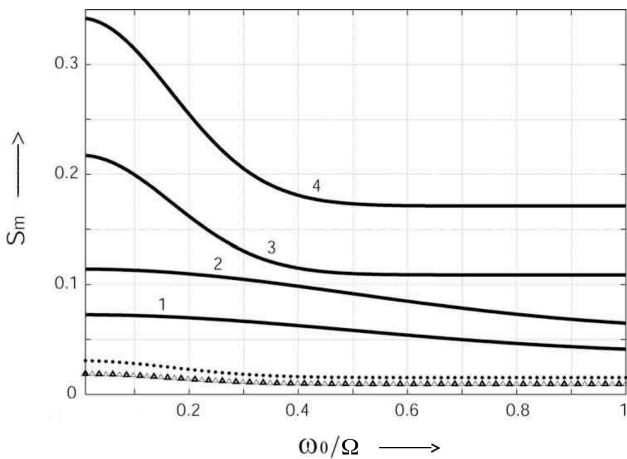


Рис. 6. Залежність енергії поглинутої витягнутою ( $R_{\perp}/R_{\parallel}=0.47$ ) металевою наночастинкою від частоти несучої хвилі при різних  $\Gamma$ :  $3.64 \times 10^{15} \text{ c}^{-1}$  (криві 1, 2) і  $1.215 \times 10^{15} \text{ c}^{-1}$  (3, 4). Об'єм частинки дорівнює об'єму сфери з  $R = 100 \text{ \AA}$ . Криві 1, 3 відповідають поляризації, при якій магнітне поле направлено вздовж осі обертання сфероїда. Криві 2, 4 відповідають поляризації, при якій магнітне поле направлено перпендикулярно до осі обертання сфероїда. Точками передано хід феноменологічних частотних залежностей у  $\perp$  — і трикутниками — у  $\parallel$ -поляризаціях.

Цікаво було б простежити за поведінкою поглинання наночастинки при зміні об'єму, але фіксованій формі частинки. Це можна було б зробити, змінюючи в отриманих вище формулах радіус еквівалентної сфери  $R$  при фіксованому відношенні  $R_{\perp}/R_{\parallel}$ . Така залежність для несферичних може сильно відрізнятись від аналогічної залежності для сферичних частинок і вимагає окремого дослідження. Проблема полягає в тому, що при зміні об'єму й одночасному збереженні форми в різних напрямках розмір частинки може стати меншим від довжини вільного пробігу електрона при різних об'ємах. Подібне дослідження для електричного поглинання ми провели в [17]. Із формул (30), (40) або (32), (41) можна лише бачити, що енергія магнітного поглинання при феноменологічному описі зростає як квадрат  $R_{\perp}$ , тоді як при кінетичному описі зростання відбувається лінійно від  $R_{\perp}$ .

Побудовано теорію магнітного поглинання металевими наночастинками ультракоротких лазерних імпульсів у випадку, коли довжина вільного пробігу електрона перевищує розміри частинки або менша від неї. Одержані аналітичні вирази дають змогу вивчати магнітне поглинання імпульсів залежно від їх тривалості, величини несучої частоти, форми частинки та поляризації магнітного поля. Для різних значень тривалості імпульсу проаналізовано залежність поглинутої енергії сфероїдальною металевою наночастинкою від ступеня її сплюснутості чи витягнутості як на частоті плазмонного резонансу, так і при частотах, які її перевищують або менші від неї. Знайдено відповідність між результатами, одержаними у феноменологічному й кінетичному підходах.

У несферичних частинках поглинання істотно залежить від поляризації магнітного поля стосовно частинки. Так, для сфероїдальних МН при напрямі магнітного поля впоперек до осі обертання сфероїда ( $\perp$ -поляризації) поглинання зростає порівняно з частинами сферичної форми у витягнутих і падає в сплюснутих МН такого ж об'єму. У випадку ж орієнтації магнітного поля вздовж осі обертання частинки ( $\parallel$ -поляризації) все навпаки: зростає поглинання у сплюснутих і падає у витягнутих МН.

Більшою мірою поглинається енергія лазерних імпульсів зі все більшим значеннями  $1/\Gamma$ . При цьому зі зростанням *сплюснутості* частинки поглинання наростає для повздовжньої ( $\parallel$ ) і падає — для поперечної ( $\perp$ ) поляризації магнітного поля. Для частинок *витягнутої* форми при  $\perp$ -поляризації магнітного поля поглинання зі збільшенням витягнутості частинки зростає, сягаючи максимуму при співвідношенні півосей сфероїда  $R_{\perp}/R_{\parallel} \approx 7/15$ , і падає при більших витягнутостях. У  $\parallel$ -поляризації зі зростанням витягнутості поглинання спадає.

При фіксованій тривалості імпульсу та  $\perp$ -поляризації магнітного поля величина магнітного поглинання в максимумі, яку одержуємо при кінетичному описі, може на порядок й більше (для частинок з  $R < 100 \text{ \AA}$ ) перевищувати відповідну, одержану при феноменологічному підході.

Зі зменшенням несучої частоти поглинання енергії в наночастинках витягнутої форми відбувається інтенсивніше при  $\perp$ -поляризації магнітного поля. При цьому імпульси більшої тривалості поглинаються ліпше при найнижчих частотах несучої хвилі. Для сплюснутих частинок, навпаки, швидше зростання поглинання енергії в МН зі зростанням несучої частоти відбувається при  $\parallel$ -поляризації магнітного поля, ніж при його  $\perp$ -поляризації.

Роботу виконано за часткової фінансової підтримки (проект М-196 МОН України, проект ВЦ-138).

**Додаток**

Нижче наведено значення інтеграла, який входить у формулу (43).

$$\int_0^{\nu_S} x^2 \left( e^{-\frac{(x-\omega_0)^2}{4\Gamma^2}} + e^{-\frac{(x+\omega_0)^2}{4\Gamma^2}} \right)^2 dx = \frac{\Gamma}{2} e^{-\frac{(\nu_S+\omega_0)^2}{2\Gamma^2}} \times \left( -2\Gamma(\nu_S - \omega_0) - 4\nu_S\Gamma e^{\frac{\nu_S\omega_0}{\Gamma^2}} - 2\Gamma(\nu_S + \omega_0) e^{\frac{2\nu_S\omega_0}{\Gamma^2}} + 2\sqrt{2\pi}\Gamma^2 e^{\frac{\nu_S(\nu_S+2\omega_0)}{2\Gamma^2}} \operatorname{Erf} \left( \frac{\nu_S}{\sqrt{2}\Gamma} \right) + \sqrt{2\pi}(\Gamma^2 + \omega_0^2) e^{\frac{(\nu_S+\omega_0)^2}{2\Gamma^2}} \times \left[ \operatorname{Erf} \left( \frac{\nu_S - \omega_0}{\sqrt{2}\Gamma} \right) + \operatorname{Erf} \left( \frac{\nu_S + \omega_0}{\sqrt{2}\Gamma} \right) \right] \right).$$

- 
- [1] С. А. Ахманов, В. А. Выслоух, А. С. Чиркин, *Оптика фемтосекундных лазерных импульсов* (Наука, Москва, 1988).
- [2] А. М. Желтиков, *Сверхкороткие импульсы и методы нелинейной оптики* (Физматлит, Москва, 2006).
- [3] D. Boyer *et al.*, *Science* **297**, 1160 (2002).
- [4] J.-Y. Bigot, V. Halte, J.-C. Merle, A. Daunois, *Chem. Phys.* **251**, 181 (2000); M. Bauer, M. Aeschlimann, *J. Electron. Spectrosc. Relat. Phenom.* **124**, 225 (2002).
- [5] F. Stietz *et al.*, *Phys. Rev. Lett* **84**, 5644 (2000); B. Lamprrecht *et al.*, *Appl. Phys. B* **69**, 223 (1999).
- [6] А. Ф. Борщ, М. С. Бродин, В. И. Волков, В. Р. Ляховецкий, Р. Д. Федорович, *Письма в Журн. эксп. теор. физ.* **84**, 248 (2006).
- [7] A. Arbouet *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **93**, 127401 (2004).
- [8] S. Berciaud *et al.*, *Nano Lett.* **5**, 515 (2005).
- [9] M. Perner *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **78**, 2192 (1997).
- [10] U. Kreibig, M. Vollmer, *Optical Properties of Metal Clusters* (Springer-Verlag, Berlin, 1995).
- [11] W. A. de Heer, *Rev. Mod. Phys.* **65**, 611 (1993).
- [12] P. M. Tomchuk, N. I. Grigorchuk, *Phys. Rev. B* **73**, 155423 (2006).
- [13] М. І. Григорчук, П. М. Томчук, *Журн. фіз. досл.* **9**, 135 (2005).
- [14] П. М. Томчук, М. І. Григорчук, *Укр. фіз. журн.* **52**, 889 (2007).
- [15] Л. Д. Ландау, Е. М. Лифшиц, *Электродинамика сплошных сред* (Наука, Москва, 1982).
- [16] Г. Бремерман, *Распределения, комплексные переменные и преобразования Фурье* (Мир, Москва, 1968).
- [17] Н. И. Григорчук, П. М. Томчук, *Физ. низк. темп.* **33**, 461 (2007).

## MAGNETIC ABSORPTION OF ULTRASHORT LASER PULSES BY METALLIC NANO-PARTICLES OF SPHEROIDAL FORM

N. I. Grigorchuk<sup>1</sup>, P. M. Tomchuk<sup>2</sup>,

<sup>1</sup>*Boholyubov Institute for Theoretical Physics, NAS of Ukraine,  
14-b Metrologichna St., Kyiv, 03680  
e-mail: ngrigor@bitp.kiev.ua,*

<sup>2</sup>*Institute for Physics, NAS of Ukraine,  
46 Nauka Ave., Kyiv, 03680  
e-mail: ptomchuk@iop.kiev.ua*

The theory for the energy of magnetic absorption by particles of a nonspherical shape by irradiation of the ultrashort laser pulses of different duration and carrying frequencies is developed. For the particles having the oblate or prolate spheroidal shape there has been found a dependence of this energy on the orientation of the magnetic field upon particle, degree of its deviation from the spherical form, pulse duration, and the magnitude of carrier frequency of the laser ray. An appreciable absorption growth at the length of free electron pass large comparing to the particle size is established. The phenomenological and kinetic approach is compared each with other.