

УДК 538.915

РЕЗОНАНС ФАНО В ТРЕХМЕРНОЙ СИСТЕМЕ МЕТАЛЛИЧЕСКИХ НАНОЧАСТИЦ

А.О. МЕЛИКЯН^{1*}, А.Р. МИНАСЯН², П.А. ПЕТРОСЯН³

¹Российско–Армянский университет, Ереван, Армения

²Национальная научная лаборатория им. А.И. Алиханяна, Ереван, Армения

³Ереванский государственный университет, Ереван, Армения

*e-mail: armen_melikyan@hotmail.com

(Поступила в редакцию 22 апреля 2017 г.)

Представлены расчеты по резонансу Фано в трехмерной системе одинаковых вытянутых металлических наносфероидов, расположенных в вершинах правильного тетраэдра. Длинная ось одного из сфероидов ориентирована вдоль оси симметрии третьего порядка тетраэдра (ось Z), а длинные оси остальных трех лежат в ортогональной плоскости, образуя между собой углы $2\pi/3$. Вектор поляризации падающей световой волны осциллирует вдоль оси Z , непосредственно возбуждая плазмонные колебания только в одном сфероиде. Приведены результаты расчетов, показывающие сильную неравномерность распределения энергии между сфероидными для различных ориентаций сфероидов, перпендикулярных оси Z .

1. Введение

Резонанс Фано – важный пример резонанса в колебательной системе [1], который проявляется как в классических, так и квантовых системах. В общих чертах его суть можно объяснить на следующем примере из оптики. Рассмотрим сложную колебательную систему, состоящую из двух частей – А и В. Пусть внешнее поле определенной частоты действует только на А, но из-за взаимодействия между частями системы возбуждается также и В. В результате А находится под действием двух полей – внешнего и создаваемого частью В. При определенных условиях деструктивная интерференция этих двух полей может привести к резкому уменьшению амплитуды колебаний в части А. Тогда поглощенная энергия будет практически полностью скапливаться в той части системы, которая непосредственно не возбуждается внешним полем, т. е. в части В. Таким образом, из-за взаимодействия между частями системы может иметь место неравномерное распределение поглощенной энергии между ними. Это явление может найти разнообразное применение.

В настоящей работе рассмотрен резонанс Фано в трехмерной системе из одинаковых наностержней, центры которых расположены в вершинах тетраэдра, во внешнем световом поле (рис.1). Насколько нам известно, резонанс Фано в трехмерной системе наночастиц рассматривается впервые.

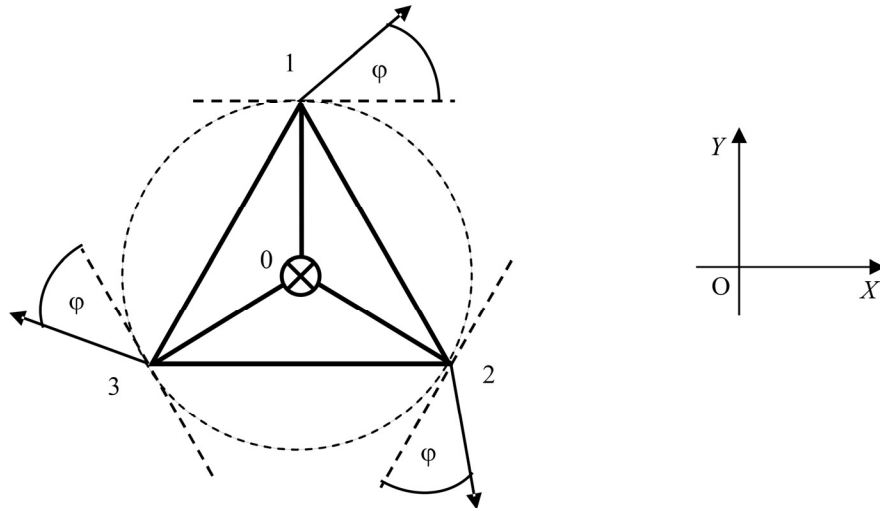


Рис.1. Колебательная система, состоящая из двух частей – А и В. Наностержни 1, 2 и 3 образуют часть В, а наностержень 0 – часть А. Наностержень системы В и касательная к описанной окружности треугольника 123 в соответствующей точке образуют угол φ .

2. Система сферондов

Выбор системы, состоящей именно из наностержней, обусловлен тем, что эти частицы обладают оптической анизотропией, которая усиливается с увеличением отношения длины к диаметру. Частота продольных коллективных колебаний электронов сильно зависит от указанного отношения [2], тогда как частота поперечных колебаний малочувствительна к его величине. Поэтому выбором геометрии стержня можно добиться достаточно хорошего разделения указанных частот, а изменяя частоту падающей на стержень световой волны, можно избирательно возбуждать тот или иной тип колебаний. Указанное свойство сильно расширяет возможности системы наностержней для реализации резонанса Фано.

Рассмотрим систему одинаковых наностержней во внешнем монохроматическом поле, частота которого близка к частоте продольных дипольных колебаний. Конфигурация системы выбрана такой, что свет непосредственно взаимодействует только с одним из наностержней, а в других продольные колебания возбуждаются за счет взаимодействия между стержнями.

Нас интересует качественная сторона явления, поэтому, чтобы избежать численных расчетов, заменим наностержни вытянутыми сфероидами с размерами, меньшими длины волны λ падающего света, т. к. оптические свойства таких частиц хорошо описываются простыми формулами. Кроме того, размеры всей системы сфероидов считаются малыми по сравнению с λ , что подразумевает также малость межчастичных расстояний относительно длины волны. Такая геометрия позволяет при описании взаимодействия системы с электромагнитным полем использовать квазистатическое приближение, которое означает пренебрежение эффектами запаздывания взаимодействия. Поправки, возникающие за счет запаздывания, могут быть учтены методом Рэлея [3]. Фактически, мы имеем систему точечных сфероидов, поперечная поляризуемость которых пренебрежимо мала из-за большой отстройки от резонанса, а продольная поляризуемость $\alpha(\omega)$ дается формулой [4]

$$\alpha(\omega) = \left[\frac{\varepsilon(\omega) - \varepsilon_m}{\varepsilon_m + \xi(\varepsilon(\omega) - \varepsilon_m)} \right] \frac{a^2 c}{3}, \quad (1)$$

где $\varepsilon(\omega)$ – зависящая от частоты комплексная диэлектрическая проницаемость материала сфероида (металл), ε_m – диэлектрическая постоянная среды, в которую погружена система, a и c – соответственно меньшая и большая полуоси сфероида, ξ – деполяризующий фактор, который зависит от величины отношения a/c [4]. В частности, выбирая $c/a = 2.5$, имеем $\xi = 0.135$. Отметим, что в случае сферы $a = c$ и $\xi = 1/3$. Что касается функции $\varepsilon(\omega)$, ее экспериментально определенные значения для Ag, Au и Cu приведены в работе [5]. Однако гораздо удобнее иметь дело с широко используемой модельной функцией

$$\varepsilon(\omega) = 8 - \frac{\omega_p^2}{\omega(\omega + i\gamma)}, \quad (2)$$

где ω_p – плазменная частота электронного газа, которую мы примем равной 9 эВ, и γ – константа релаксации, типичное значение которой в случае благородных металлов 0.1 эВ.

Рассмотрим правильный тетраэдр, три вершины которого расположены в плоскости XY , а одна – на оси Z (рис.1). Центры четырех сфероидов расположены в вершинах тетраэдра, причем длинная ось одного из них, который находится на оси Z и которому припишем индекс 0, ориентирована вдоль этой оси. Длинные оси других трех сфероидов (с индексами 1, 2 и 3) расположены в плоскости XY и образуют с касательными к описанной около основания тетраэдра окружности одинаковый угол ϕ таким образом, что ось Z является осью симметрии третьего порядка для всей системы. Стрелки и крестик указывают направления дипольных моментов сфероидов в произвольный момент времени.

Электрическое поле волны, действующей на систему, колеблется вдоль оси Z , и в силу условий, наложенных на размеры системы, поле можно считать однородным. Частота поля близка к частоте продольных дипольных коллективных колебаний электронов и достаточно удалена от частот поперечных колебаний и продольных колебаний высшей мультипольности. Тогда внешнее поле непосредственно действует только на сфероид в вершине 0, вызывая в нем колебания. Тот, в свою очередь, создает поле, действующее на остальные три сфероида своей продольной относительно длинной оси каждого из сфероидов 1, 2 и 3 составляющей. Таким образом, во всех четырех частицах возбуждаются продольные коллективные колебания электронов, которые называются плазменными колебаниями. Фактически, мы имеем вынужденные колебания системы осцилляторов с затуханием, которое описывается мнимой частью функции $\varepsilon(\omega)$. На первый взгляд может показаться, что система содержит всего четыре осциллятора, но на самом деле их гораздо больше. Кроме электронов проводимости в процессе участвуют также и валентные электроны, совершающие межзонные переходы, вклад которых учитывается функцией $\varepsilon(\omega)$ [5].

3. Расчет накопленной энергии колебаний

Теперь перейдем к расчету интересующей нас величины, которая называется эффективностью резонанса Фано (FRE). Она была впервые введена в работе [6] как характеристика неоднородности распределения энергии колебаний между частями системы. Обозначив через W_m энергию, поглощаемую в единицу времени сфероидом с индексом m , будем иметь

$$\text{FRE} = \frac{W_1 + W_2 + W_3}{W_0}. \quad (3)$$

Поскольку накопленная энергия пропорциональна поглощаемой мощности, представленная формулой (3) величина может служить искомой характеристикой. Для расчета величин W_m напомним, что работа, совершаемая электрическим полем над системой зарядов в единицу времени, равна [7]

$$W = \int \mathbf{E}(t) \mathbf{j}(t) dV, \quad (4)$$

где $\mathbf{E}(t)$ – вектор напряженности электрического поля (подчеркнем, что речь идет о полном поле, создаваемом всеми зарядами системы плюс внешнее поле) и $\mathbf{j}(t)$ – плотность тока. Если длина волны света гораздо больше размеров системы, вектор $\mathbf{E}$ может быть вынесен из-под знака интеграла, после чего, переходя от непрерывного распределения к системе точечных зарядов (в данном случае электронов), объемный интеграл от плотности тока можно записать в виде суммы $e \sum \mathbf{E}_n(t)$. Тогда вместо (4) будем иметь

$$W = \mathbf{E}(t) \dot{\mathbf{d}}(t), \quad (5)$$

где $\dot{\mathbf{d}}(t)$ – производная по времени полного дипольного момента сфероид. Поскольку внешнее поле считаем монохроматическим и все величины, входящие в (5), изменяются со временем с частотой внешнего поля, но с различными фазами, удобно перейти к комплексным амплитудам $\mathbf{E}$ и $\mathbf{d}$ по формулам

$$\mathbf{E}(t) = \text{Re}(\mathbf{E}e^{-i\omega t}), \quad \mathbf{d}(t) = \text{Re}(\mathbf{d}e^{-i\omega t}). \quad (6)$$

Учитывая связь амплитуды дипольного момента с амплитудой поля

$$\mathbf{d} = \alpha(\omega) \mathbf{E} \quad (7)$$

и подставляя (6) и (7) в (5), после усреднения по периоду получаем

$$W = \frac{\omega}{2} \text{Im}[\alpha(\omega)] |\mathbf{E}|^2. \quad (8)$$

Мы считаем все сфероиды идентичными, поэтому согласно (7)

$$\mathbf{d}_0 = \alpha(\omega) (\mathbf{E}_0 + \mathbf{E}_{10} + \mathbf{E}_{20} + \mathbf{E}_{30}), \quad (9a)$$

$$\mathbf{d}_1 = \alpha(\omega) (\mathbf{E}_{01} + \mathbf{E}_{21} + \mathbf{E}_{31}), \quad (9b)$$

где $\mathbf{d}_i$ – комплексная амплитуда диполя с индексом i ($i = 0, 1, 2, 3$), $\mathbf{E}_0$ – амплитуда внешнего поля, $\mathbf{E}_{ij}$ – амплитуда поля, создаваемого диполем с индексом i в точке, где расположен диполь j , равная в принятом нами приближении [7]

$$\mathbf{E}_{ij} = \frac{3\mathbf{n}_{ij}(\mathbf{n}_{ij}\mathbf{d}_i) - \mathbf{d}_i}{R^3}, \quad (10)$$

где $\mathbf{n}_{ij}$ – единичный вектор, направленный от диполя i к диполю j , R – расстояние между диполями. Из формулы (10) может быть выведен частный случай теоремы взаимности для энергий взаимодействия двух систем заряженных частиц

$$\mathbf{E}_{ij}\mathbf{d}_j = \mathbf{E}_{ji}\mathbf{d}_i. \quad (11)$$

Введем также единичные векторы $\mathbf{n}_i$, указывающие направления дипольных моментов. В силу симметрии системы справедливы следующие соотношения:

$$\mathbf{E}_{10}\mathbf{n}_1 = \mathbf{E}_{20}\mathbf{n}_2 = \mathbf{E}_{30}\mathbf{n}_3, \quad (12a)$$

откуда с учетом (11) получаем

$$\mathbf{E}_{01}\mathbf{n}_1 = \mathbf{E}_{02}\mathbf{n}_2 = \mathbf{E}_{03}\mathbf{n}_3. \quad (12b)$$

Кроме того, имеем

$$\mathbf{d}_1\mathbf{n}_1 = \mathbf{d}_2\mathbf{n}_2 = \mathbf{d}_3\mathbf{n}_3. \quad (12c)$$

Последняя формула выражает равенство абсолютных значений дипольных моментов: $d_1 = d_2 = d_3$. В нашем случае $W_1 = W_2 = W_3$, тогда

$$\text{FRE} = 3W_1 / W_0. \quad (13)$$

Согласно (8), (9a), (9b) и (13), получаем

$$\text{FRE} = 3|\mathbf{d}_1|^2 / |\mathbf{d}_0|^2. \quad (14)$$

Отсюда следует, что для вычисления FRE достаточно определить отношение d_1 / d_0 , подставив (10) в (9b) и учитывая (12c), т. е.

$$\frac{d_1}{d_0} = \beta(\omega) \frac{3(\mathbf{n}_{01}\mathbf{n}_1)(\mathbf{n}_{01}\mathbf{n}_0)}{1 - \beta(\omega) [3(\mathbf{n}_{21}\mathbf{n}_1)(\mathbf{n}_{21}\mathbf{n}_2) + 3(\mathbf{n}_{31}\mathbf{n}_1)(\mathbf{n}_{31}\mathbf{n}_3) + 1]}, \quad (15)$$

где $\beta(\omega) = \alpha(\omega) / R^3$. Здесь мы учли, что $\mathbf{n}_1 + \mathbf{n}_2 + \mathbf{n}_3 = 0$.

Осталось вычислить скалярные произведения, входящие в выражение (15). Обозначим сторону тетраэдра через a , высоту – h , а радиус описанной около основания окружности – r , тогда

$$r = a/\sqrt{3}, \quad h = a\sqrt{2/3}, \quad (16)$$

откуда получаем

$$\begin{aligned} (\mathbf{n}_{01}\mathbf{n}_1)(\mathbf{n}_{01}\mathbf{n}_0) &= \frac{\sqrt{2}}{3} \sin\varphi, \\ (\mathbf{n}_{21}\mathbf{n}_1)(\mathbf{n}_{21}\mathbf{n}_2) &= (\mathbf{n}_{31}\mathbf{n}_1)(\mathbf{n}_{31}\mathbf{n}_3) = \cos\left(\frac{\pi}{3} + \varphi\right) \cos\left(\frac{\pi}{3} - \varphi\right). \end{aligned} \quad (17)$$

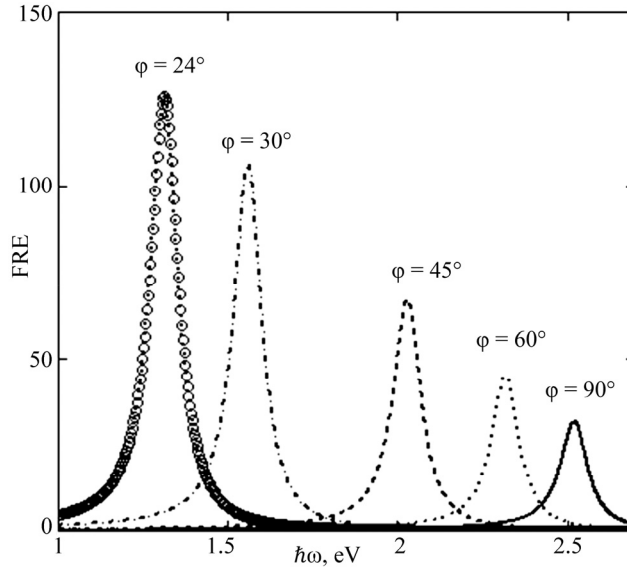


Рис.2. Зависимости FRE от частоты внешнего поля и угла φ для случая $R = 25$ нм.

Окончательное выражения для эффективности резонанса Фано имеет вид

$$\text{FRE} = 6 \left| \frac{\alpha(\omega)}{R^3} \right|^2 \frac{\sin^2 \varphi}{\left| 1 - \frac{\alpha(\omega)}{R^3} \left[6 \cos \left(\frac{\pi}{3} + \varphi \right) \cos \left(\frac{\pi}{3} - \varphi \right) + 1 \right] \right|^2}. \quad (18)$$

Зависимость FRE от частоты внешнего поля и угла φ для случая $R = 25$ нм приведены на рис.2. Следует отметить, что при дальнейшем уменьшении φ FRE резко убывает, обращаясь в нуль при $\varphi = 0$, как и следует из формулы (18). Это связано с обращением в нуль продольной составляющей поля, создаваемого диполем в вершине 0, в точках, где находятся остальные диполи. Кроме того, небольшое изменение межчастичного расстояния R приводит к сильному изменению высоты пиков. Например, при $R = 23$ нм максимумы FRE возрастают более, чем вдвое, а при $R = 27$ нм – убывают вдвое (рис.3).

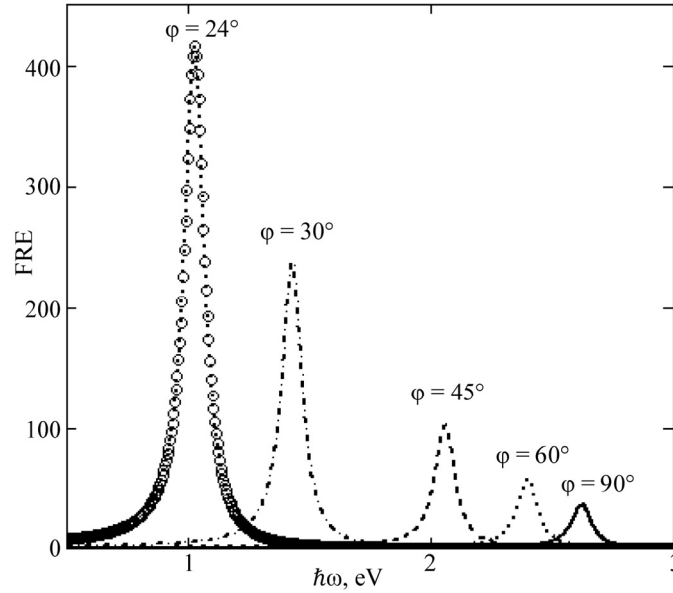


Рис.3. Зависимости FRE от частоты внешнего поля и угла φ для случая $R = 23$ нм.

Отметим также, что уменьшение FRE при угле 90° связано с тем, что деполяризующее поле, действующее на каждый из диполей 1–3 со стороны двух других при этом значении угла оказывается максимальным. Таким образом, величина FRE формируется в условиях конкуренции двух факторов – поляризующего влияния диполя 0 на диполи 1, 2 и 3 и деполяризующего влияния последних трех друг на друга.

4. Заключение

Рассмотренная модель резонанса Фано в трехмерной системе может обеспечить хорошую эффективность, а именно: в каждом из стержней 1–3 энергия колебаний приблизительно в 30 раз превышает ту же величину в стержне 1. Это является важным обстоятельством для различных применений, в частности, медуко-биологических. В настоящее время проблема создания подобных систем наночастиц находится на стадии обсуждения.

ЛИТЕРАТУРА

1. B. Luk'yanchuk, N.I. Zheludev, S.A. Maier, N.J. Halas, P. Nordlander, H. Giessen, C.T. Chong. *Nature Mater.*, **9**, 707 (2010).
2. A. Melikyan, H. Minassian. *Chem. Phys. Lett.*, **452**, 139 (2008).
3. B.A. Папоян. *Известия НАН Армении, Физика*, **50**, 206 (2015).
4. К. Борен, Д. Хафмен. *Поглощение и рассеяние света малыми частицами*. Москва, Мир, 1986.
5. P.B. Johnson, R.W. Christy. *Phys. Rev. B*, **6**, 4370 (1972).
6. M.R. Goncalves, A. Melikyan, H. Minassian, T. Makaryan, O. Marti. *Optics Express*, **22**, 24516 (2014).
7. Л.Д. Ландау, Е.М. Лифшиц. *Теория поля*. Москва, Физматлит, 1962.

ՖԱՆՈՅԻ ՌԵԶՈՆԱՆՍԸ ՄԵՏԱՂԱԿԱՆ ՆԱՆՈՄԱՍՆԻԿՆԵՐԻ 3D ՀԱՄԱԿԱՐԳՈՒՄ
Ա.Հ. ՄԵԼԻԿՅԱՆ, Հ.Ռ. ՄԻՆԱՍՅԱՆ, Պ.Ա. ՊԵՏՐՈՍՅԱՆ

Ներկայացված են կանոնավոր քառանիստի գագաթներում դասավորված երկարաձիգ մետաղական նանոսֆերոիդների եռաչափ համակարգում Ֆանոյի ռեզոնանսին վերաբերող հաշվարկները: Սֆերոիդներից մեկի երկար առանցքը ուղղված է քառանիստի երրորդ կարգի սիմետրիայի առանցքի երկայնքով (Z -առանցք), իսկ մյուս երեքի երկար առանցքերը գտնվում են ուղղահայաց հարթության մեջ կազմելով միմյանց հետ $2\pi/3$ անկյուն: Ընկնող լույսի բևեռացման վեկտորը տատանվում է Z -առանցքի երկայնքով անմիջականորեն զրգռելով պլազմոնային տատանումներ միայն մեկ սֆերոիդում: Ներկայացված են հաշվարկների արդյունքներ որոնք ցույց են տալիս Z -առանցքին ուղղահայաց սֆերոիդների տարբեր կողմնորոշումների համար սֆերոիդների միջև էներգիայի բաշխման խիստ անհամասեռությունը:

FANO RESONANCE IN 3D SYSTEM OF METALLIC NANOPARTICLES

A.O. MELIKYAN, A.R. MINASIAN, P.A. PETROSYAN

Calculations for Fano resonance in a 3D system of identical prolate metallic nanospheroids located at the vertices of a regular tetrahedron are presented. The long axis of one of the spheroids is oriented along the symmetry axis of the third order of the tetrahedron (Z -axis), and the long axes of the remaining three lie in the orthogonal plane, forming angles $2\pi/3$ between themselves. The polarization vector of the incident light wave oscillates along the Z -axis, directly exciting plasmon oscillations in only one spheroid. The results of calculations showing the strong nonuniformity of energy distribution between spheroids for various orientations of spheroids perpendicular to the Z -axis are presented.