PACS 36.40.Cg; 71.45.Gm

Плазмонные колебания в линейном кластере сферических наночастиц

И.В.Забков, В.В.Климов, И.В.Трешин, О.А.Глазов

Собственные частоты и собственные функции плазмонных колебаний в бесконечном линейном кластере сферических наночастиц найдены аналитически, в рамках квазистатического подхода, и численно, в рамках метода конечных элементов. Показано, что спектр плазмонных колебаний имеет сложную структуру и в нем присутствуют ранее неизвестные, сильно локализованные моды в высокочастотной области спектра. Полученные результаты могут найти применение при проектировании плазмонных нановолноводов и нанолазеров.

Ключевые слова*: наночастицы, нановолновод, плазмонные моды, наноплазмоника.*

1. Введение

В настоящее время благодаря успехам нанотехнологий активно развивается область нанооптики – наноплазмоника, которая занимается исследованием коллективных колебаний электронов проводимости в металлических частицах [1]. Одной из важных задач наноплазмоники является изучение оптических свойств линейных и других кластеров, обусловленное, в том числе, и желанием использовать массивы плазмонных наночастиц в качестве волноводов. Это может позволить интегрировать современную кремниевую электронику с высокоэффективными оптическими плазмонными волноводами [2 – 8].

Точное решение задачи о рассеянии электромагнитной волны сферой было найдено более чем 100 лет назад Ми [9] и независимо Дебаем [10]. В 1979 году Бергман [11], решая квазистатическую задачу о нахождении эффективной диэлектрической проницаемости двухкомпонентной среды со сферическими вкраплениями, предложил разлагать собственные функции – а по сути, потенциал внутри частиц – по сферическим гармоникам с центром в каждой сфере. Аналогичный подход использовал Жерарди [12], рассматривая задачу о нахождении спектра поглощения кластера, состоящего из нескольких сфер произвольного размера. Важным результатом работ [11, 12] является вычисление коэффициентов, описывающих взаимодействие двух мультипольных распределений потенциала, расположенных в разных точках. Можно отметить, что аналогичные коэффициенты были вычислены Кларо [13].

Неплохое понимание физических процессов, происходящих при взаимодействии света с кластерами, может быть достигнуто при использовании модели, в которой каждая частица аппроксимируется точечным электрическим диполем, а квадрупольные и более высокие моменты не учитываются. При этом Кларо [14], изучая кластер из двух, трех и бесконечного числа частиц, показал, что дипольная модель хорошо работает до тех пор, пока расстояние между центрами частиц в три раза больше их радиуса. Эта модель применяется для вычисления дисперсионных кривых плазмонных мод в линейном кластере в квазистатическом случае [2] и в случае учета запаздывания [15], а также для вычисления переноса энергии линейной цепочкой наночастиц в квазистатическом приближении [16]. В [15] также рассматривается влияние поглощения в частицах кластера на дисперсионные кривые распространяющихся плазмонов. В [17] показано, что в точке пересечения дисперсионных кривых плазмонов с дисперсионной кривой фотонов в свободном пространстве наблюдается не только серьезное расхождение результатов, полученных с учетом запаздывания и в квазистическом случае, но и возникает разрыв дисперсионных кривых.

Вопрос о влиянии мультиполей более высокого порядка на оптические свойства кластера поднимается во множестве работ. Например, в квазистатическом случае мультипольное взаимодействие рассматривается в [13, 14, 18]. В [19 – 21] решается квазистатическая задача для двух сфер в бисферических координатах, каждый член разложения потенциала в которых уже учитывает бесконечное число обычных мультиполей. В [22] в биполярных координатах точно решена задача для двух цилиндров.

Аналитическое решение задачи взаимодействия света с кластерами сферических частиц с учетом эффектов запаздывания было впервые получено Жерарди [23] при вычислении их сечения поглощения. При этом электромагнитное поле разлагалось по векторным сферическим

И.В.Забков. Московский физико-технический институт (национальный исследовательский университет), Россия, Московская обл., 141700 Долгопрудный, Институтский пер., 9; Физический институт им. П.Н.Лебедева РАН, Россия, 119991 Москва, Ленинский просп., 53; e-mail: zabkov@gmail.com
В.В.Климов, О.А.Глазов. Физический институт им. П.Н.Лебедева РАН, Россия, 119991 Москва, Ленинский просп., 53;
e-mail: vklim@lebedev.ru, glazov62@mail.ru
И.В.Трешин. Национальный исследовательский ядерный университет «МИФИ», Россия, 115409 Москва, Каширское ш., 31; Физический институт им. П.Н.Лебедева РАН, Россия, 119991 Москва, Ленинский просп., 53; e-mail: ilya.treshin@gmail.com

Поступила в редакцию 22 апреля 2011 г., после доработки – 27 июня 2011 г.

гармоникам. Позже эта задача рассматривалась многими авторами, в том числе Маковски [24] и Ху [25]. Распространение плазмонных колебаний вдоль кластера впервые было изучено в [26]. В [27] исследуется линейный кластер, состоящий из нескольких сферических частиц (до двенадцати) и помещенный во внешнее поле. В [28] изучена зависимость интенсивности рассеяния света линейным кластером, состоящим из десяти наносфер, от угла падения внешней плоской волны. В [29] сравниваются дипольное и мультипольное решения задачи рассеяния света димером. Для расчета оптических свойств кластеров также активно применяются численные методы, в том числе метод конечных разностей во временной области (FDTD) [3], метод конечных элементов (FEM) [30] и метод дискретных диполей (DDA) [31, 32]. В [32] численно исследуются оптические свойства различных конфигураций из сферических частиц и проводится сравнение результатов, полученных методами, используемыми в работах [23, 25], а также методом дискретных диполей с одним и несколькими диполями на частицу. Влияние подложки рассматривается в [33, 35]. В [36] изучены оптические свойства кластера магнитно-плазмонных частиц, расположенных на диэлектрической подложке.

Однако до настоящего времени структура собственных плазмонных колебаний и соответствующие собственные частоты линейного кластера сферических наночастиц не исследовались ни в квазистатическом приближении, ни в случае задачи с запаздыванием. Понимание структуры собственных функций, т. е. распределений потенциала и поля, а также зависимости плазмонных частот от геометрии кластера важно для описания поведения кластера во внешнем поле. При этом наряду с внешними плоскими волнами можно исследовать взаимодействие кластера с локализованным излучением атомов и молекул. Собственные – в отсутствие внешнего поля – колебания кластеров наночастиц можно находить решением однородных уравнений Максвелла. Поля, возникающие при помещении кластера в произвольное внешнее поле, можно найти путем их разложения в ряд по этим самым собственным функциям [1].

Цель настоящей работы – нахождение и анализ собственных колебаний линейного кластера сферических металлических наночастиц, т. е. дисперсионных кривых возникающих плазмонов и пространственных распределений потенциала, соответствующих различным плазмонным модам.

Геометрия задачи показана на рис.1. Мы будем пользоваться постановкой задачи, аналогичной той, которая применялась в [11]. Для вычисления пространственного распределения потенциалов нами было также проведено моделирование методом конечных элементов, результаты которого оказались в хорошем согласии с полученными аналитическими результатами.

2. Аналитическое решение задачи о собственных колебаниях линейного кластера сферических наночастиц

Для начала рассмотрим произвольный кластер, состоящий из сферических наночастиц. Пусть он находится в неограниченном однородном и изотропном пространстве с диэлектрической проницаемостью ε_{h}. Сфера с номером α имеет радиус a_α и диэлектрическую проницаемость ε.

Для нахождения в квазистатическом приближении собственных плазмонных мод наночастиц любой формы и их кластеров надо решить однородную – без источников – задачу теории потенциала, т. е. уравнение Лапласа с требованием непрерывности потенциала и нормальной компоненты электрической индукции на границе каждой сферы и условием убывания потенциала на бесконечности.

Для одной сферы радиусом a_0 эта задача имеет хорошо известное решение [1], а собственные функции ψ_{lm} и собственные значения диэлектрической проницаемости ε_l имеют вид

$$\psi_{lm}(\boldsymbol{r}) = \begin{cases} r^l Y_l^m(\theta,\varphi), & r \leqslant a_0, \\ \dfrac{a_0^{2l+1}}{r^{l+1}} Y_l^m(\theta,\varphi), & r > a_0, \end{cases} \qquad \frac{\varepsilon_l}{\varepsilon_h} = -\frac{l+1}{l},$$

$$l = 1, 2, \ldots, \; m = -l \ldots l, \tag{1}$$

$$Y_l^m(\theta,\varphi) = (-1)^m \left[\frac{2l+1}{4\pi}\frac{(l-m)!}{(l+m)!}\right]^{1/2} P_l^m(\cos\theta)\exp(\mathrm{i}m\varphi),$$

где $Y_l^m(\theta,\varphi)$ – сферические гармоники; $P_l^m(\cos\theta)$ – присоединенные полиномы Лежандра [37]; r, θ, φ – сферические координаты, связанные с центром сферы. Случай $l = 0$ соответствует тривиальному случаю статического заряда, распределенного по поверхности сферы. Аналогичное решение имеет место и для линейного кластера, но мы не будем принимать его во внимание.

Для описания поля вблизи произвольной частицы кластера, скажем частицы с номером α, удобно ввести нормированные потенциалы, связанные с радиусом-вектором $\boldsymbol{r}_\alpha$ этой частицы:

$$\Phi_{lm}^{(0\alpha)}(\boldsymbol{r}) = \frac{\psi_{lm}(\boldsymbol{r}-\boldsymbol{r}_\alpha)}{\|\psi_{lm}(\boldsymbol{r}-\boldsymbol{r}_\alpha)\|}.$$

Скалярное произведение и норма определяются так:

$$(\phi,\psi)_\alpha = \int_{V_\alpha} \nabla\phi^*\nabla\psi \,\mathrm{d}V, \qquad \|\psi\| = (\psi,\psi)_\alpha^{1/2}, \tag{2}$$

где V_α – объем частицы.

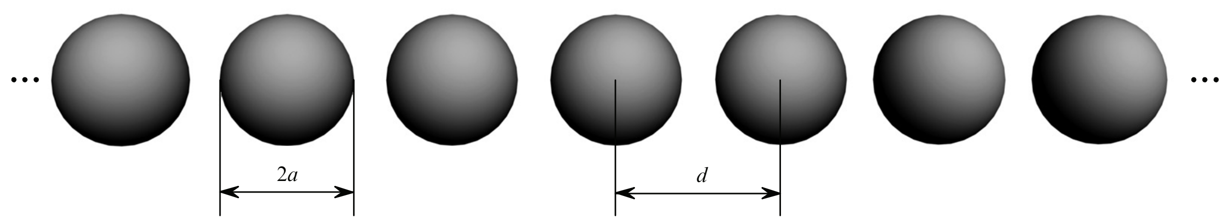

Рис.1. Геометрия задачи.

В случае кластера из сферических наночастиц потенциал внутри каждой частицы ищется в виде линейной комбинации потенциалов изолированной частицы:

$$\Phi^{(\alpha)}=\sum_{ml}A_{lm}^{(\alpha)}\Phi_{lm}^{(0\alpha)}. \tag{3}$$

В (3) и далее используется обозначение $\sum_{ml}=\sum_{m=-\infty}^{+\infty}\sum_{l=|m|}^{+\infty}$.

Интегральное уравнение для потенциала внутри частиц имеет вид [1]

$$s\Phi=\frac{1}{4\pi}\int_V \mathrm{d}\boldsymbol{r}'\nabla'\Phi(\boldsymbol{r}')\nabla'\frac{1}{|\boldsymbol{r}-\boldsymbol{r}'|}=\int_V K(\boldsymbol{r},\boldsymbol{r}')\Phi(\boldsymbol{r}')\mathrm{d}V', \tag{4}$$

$$s=\frac{1}{1-\varepsilon/\varepsilon_{\mathrm{h}}},$$

где интегрирование ведется по объему V всех сфер; $\boldsymbol{r}_\alpha\in\bigcup_\alpha V_a$. Для точек внутри частицы α из (4) получаем

$$s\Phi^{(\alpha)}(\boldsymbol{r})=\int_{V_\alpha}K(\boldsymbol{r},\boldsymbol{r}')\Phi^{(\alpha)}(\boldsymbol{r}')\mathrm{d}V'$$

$$+\sum_{\beta\neq\alpha}\int_{V_\beta}K(\boldsymbol{r},\boldsymbol{r}')\Phi^{(\beta)}(\boldsymbol{r}')\mathrm{d}V',\ \boldsymbol{r}\in V_\alpha. \tag{5}$$

Для изолированной частицы α согласно (1) имеем

$$\int_{V_\alpha}K(\boldsymbol{r},\boldsymbol{r}')\Phi^{(0\alpha)}(\boldsymbol{r}')\mathrm{d}V'=s_{0l}\Phi^{(0\alpha)},\ \ s_{0l}=\frac{l}{2l+1}. \tag{6}$$

Подставляя (3) в (5) и используя (6), получаем

$$(s-s_{0l})\sum_{ml}A_{lm}^{(\alpha)}\Phi_{lm}^{(0\alpha)}=\sum_{\beta\neq\alpha}\int_{V_\beta}K(\boldsymbol{r},\boldsymbol{r}')\sum_{ml}A_{lm}^{(\beta)}\Phi_{lm}^{(0\beta)}\mathrm{d}V'. \tag{7}$$

Домножая (7) скалярно (см. формулу (2)) на функцию $\Phi_{l'm'}^{(0\alpha)}$ и делая замену $l'm'\rightleftarrows lm$, получаем

$$(s-s_{0l})A_{lm}^{(\alpha)}=\sum_{m'l'}\sum_{\beta\neq\alpha}Q_{lm\,l'm'}^{(\alpha,\beta)}A_{l'm'}^{(\beta)},$$

$$l,l'=0,1,\dots,\ m=-l\dots l,\ m'=-l'\dots l', \tag{8}$$

где

$$Q_{lm\,l'm'}^{(\alpha\beta)}=s_{0l'}(\Phi_{lm}^{(0\alpha)},\Phi_{l'm'}^{(0\beta)})_\alpha$$

$$=s_{0l'}\int_{V_\alpha}\frac{\nabla\psi_{\alpha lm}^{*}\nabla\psi_{\beta l'm'}}{\|\psi_{\alpha lm}\|\|\psi_{\beta l'm'}\|}\mathrm{d}V \tag{9}$$

– интеграл перекрытия потенциалов $\Phi_{lm}^{(0\alpha)}$ и $\Phi_{l'm'}^{(0\beta)}$ двух сфер с радиусами a_α и a_β, имеющих центры в точках с координатами $\boldsymbol{r}_\alpha$ и $\boldsymbol{r}_\beta$ соответствено; $\psi_{\alpha lm}(\boldsymbol{r})=\psi_{lm}(\boldsymbol{r}-\boldsymbol{r}_\alpha)$; $\psi_{\beta l'm'}(\boldsymbol{r})=\psi_{l'm'}(\boldsymbol{r}-\boldsymbol{r}_\beta)$. Потенциал частицы β вне ее можно разложить в ряд по собственным функциям частицы α:

$$\psi_{\beta l'm'}(\boldsymbol{r})=\frac{a_\beta^{2l'+1}}{r_{\alpha\beta}^{l+l'+1}}\sum_{l''=0}^{\infty}\sum_{m''=-l''}^{l''}(2l'+1)B_{l''l'm''m'}\times$$

$$\times\exp[\mathrm{i}(m'-m'')\varphi_\beta]P_{l'+l''}^{m'-m''}(\cos\theta_\beta)\psi_{\alpha l''m''}(\boldsymbol{r}), \tag{10}$$

$$B_{l''l'm''m'}=$$

$$\frac{(-1)^{l'+m'}(l''+l'+m''-m')!}{[(2l'+1)(2l''+1)(l''+m'')!(l''-m'')!(l'+m')!(l'-m')!]^{1/2}},$$

где $r_{\alpha\beta},\theta_\beta,\varphi_\beta$ – сферические координаты вектора $\boldsymbol{r}_{\alpha\beta}=\boldsymbol{r}_\beta-\boldsymbol{r}_\alpha$ в системе координат частицы α. Это выражение может быть получено, например, из формул, приведенных в [38].

Подставляем (10) в выражение (9) и, используя условие ортогональности функций $(\psi_{\alpha lm},\psi_{\alpha l'm'})_\alpha=la_\alpha^{2l+1}\times\delta_{ll'}\delta_{mm'}$, получаем, что из всей суммы остается только член с $m''=m$ и $l''=l$:

$$Q_{lm\,l'm'}^{(\alpha\beta)}=\frac{a_\beta^{l'+1/2}a_\alpha^{l+1/2}}{r_{\alpha\beta}^{l+l'+1}}$$

$$\times\exp[\mathrm{i}(m'-m)\varphi_\beta]P_{l'+l}^{m'-m}(\cos\theta_\beta)(ll')^{1/2}B_{ll'mm'}, \tag{11}$$

для остальных значений индексов интеграл перекрытия равен нулю.

Система (8), (11) справедлива для любых кластеров сферических частиц. В случае периодически расположенных одинаковых наночастиц (радиусом a) справедлива теорема Блоха, и коэффициенты разложения $A_{lm}^{(\alpha)}$ могут быть представлены в виде

$$A_{lm}^{(\alpha)}=A_{lm}^{(\boldsymbol{k})}\exp(\mathrm{i}\boldsymbol{k}\boldsymbol{r}_\alpha), \tag{12}$$

где $\boldsymbol{k}$ – вектор обратной решетки. Подставляя (12) в (8), получаем

$$(s-s_{0l})A_{lm}^{(\boldsymbol{k})}=\sum_{l'm'}Q_{lm\,l'm'}^{(\boldsymbol{k})}A_{l'm'}^{(\boldsymbol{k})}, \tag{13}$$

где

$$Q_{lm\,l'm'}^{(\boldsymbol{k})}=\sum_{\beta\neq\alpha}Q_{lm\,l'm'}^{(\alpha\beta)}\exp(-\mathrm{i}\boldsymbol{k}\boldsymbol{r}_{\alpha\beta}). \tag{14}$$

В случае бесконечного линейного кластера сферических наночастиц выражение (14) можно переписать в виде

$$Q_{lm\,l'm'}^{(\boldsymbol{k})}=\sum_{n\neq n'}Q_{nlmn'l'm'}\exp[-\mathrm{i}(n'-n)kd],$$

$$Q_{nlmn'l'm'}=\left(\frac{a}{r_{\alpha\beta}}\right)^{l+l'+1}\exp[\mathrm{i}(m'-m)\varphi_\beta] \tag{15}$$

$$\times P_{l'+l}^{m'-m}(\cos\theta_\beta)(ll')^{1/2}B_{ll'mm'},$$

где n и n' – порядковые номера, отсчитываемые от частицы, расположеной в начале координат; $r_{\alpha\beta}=|n'-n|d$ – расстояние между частицами, которое определяется их порядковыми номерами (n,n') и периодом кластера d. При этом можно считать, что $\varphi_\beta=0$, а $\theta_\beta=0$ или π в зависимости от направления вектора смещения. В результате получим

$$Q_{nlmn'l'm'} = \left(\frac{a}{|n'-n|d}\right)^{l+l'+1} \times \left(\frac{n'-n}{|n'-n|}\right)^{l+l'} (ll')^{1/2} \delta_{m'm} B_{ll'mm'}. \quad (16)$$

Подставим выражение (16) в (15), выделим действительную и мнимую части и, полагая что частица α находится в начале координат, находим

$$Q^{(\boldsymbol{k})}_{lml'm'} = \begin{cases} \left(\dfrac{a}{d}\right)^{l+l'+1} \displaystyle\sum_{n=1}^{\infty} \frac{\cos(nkd)}{n^{l+l'+1}} K_{ll'm} \delta_{mm'}, \\ \mathrm{i}\left(\dfrac{a}{d}\right)^{l+l'+1} \displaystyle\sum_{n=1}^{\infty} \frac{\sin(nkd)}{n^{l+l'+1}} K_{ll'm} \delta_{mm'} \end{cases} \quad (17)$$

для четных и нечетных $l + l'$ соответственно. В (17)

$$K_{ll'm} = 2(-1)^{l'+m'} \left[\frac{ll'}{(2l+1)(2l'+1)}\right]^{1/2} \times \frac{(l+l')!}{[(l+m)!(l-m)!(l'+m)!(l'-m)!]^{1/2}},$$

причем оно отлично от нуля лишь при $|m| \leqslant l', l$.

Из (17) видно, что $Q^{(\boldsymbol{k})}_{lml'm'}$ диагонально по азимутальным квантовым числам. Таким образом, вместо (13) имеем набор систем уравнений, в которые m входит как параметр:

$$(s - s_{0l}) A^{(\boldsymbol{k})}_{lm} = \sum_{l'=|m|}^{\infty} Q^{(\boldsymbol{k})}_{lml'm} A^{(\boldsymbol{k})}_{l'm}, \quad m = 0, 1, \ldots . \quad (18)$$

Именно эту систему мы будем использовать для нахождения собственных функций и собственных частот плазмонов. Поскольку полученное решение зависит только от модуля вектора $\boldsymbol{k}$, можно ограничиться рассмотрением области $0 \leqslant kd/\pi \leqslant 1$.

Напомним, что распределение потенциала внутри частиц, соответствующее каждому резонансному значению диэлектрической проницаемости и каждому азимутальному числу m, определяется по формуле

$$\Phi^{(\alpha)}(m) = \sum_{l=|m|}^{\infty} A^{(\alpha)}_{lm} \Phi^{(0\alpha)}_{lm}.$$

Потенциал снаружи кластера вычисляется с помощью интегрального преобразования (3) с использованием выражений (4) и (6), модифицированных для внешних потенциалов:

$$\Phi(\boldsymbol{r}) = \sum_{\alpha} \Phi^{(\alpha)}_{\mathrm{out}}(\boldsymbol{r}),$$

$$\Phi^{(\alpha)}_{\mathrm{out}}(\boldsymbol{r}) = \sum_{ml} A^{(\alpha)}_{lm} \frac{s_{0l}}{s} \Phi^{(0\alpha)}_{lm}(\boldsymbol{r}) = \sum_{ml} B^{(\alpha)}_{lm} \Phi^{(0\alpha)}_{lm}(\boldsymbol{r}), \ \boldsymbol{r} \in V^{-},$$

где V^{-} – область снаружи кластера.

3. Иллюстрации аналитического решения и сравнение их с результатами моделирования методом конечных элементов

Бесконечная система линейных уравнений (18) решалась численно с учетом числа гармоник $l_{\max} = 85$ и числа соседей $n_{\max} = 45$. Считалось, что кластер находится в вакууме ($\varepsilon_{\mathrm{h}} = 1$). Увеличение $l_{\max}$ и $n_{\max}$ не приводит к сколько-нибудь заметному изменению результата. При решении вычислялись резонансные значения ε и отвечающие им собственные векторы. Плазмонные частоты ω соответствующих мод определялись в предположении классической теории Друде: $\varepsilon(\omega) = 1 - \omega_{\mathrm{pl}}^2/\omega^2$, где ω_{pl} – плазменная частота металла, т. е. $\omega = \omega_{\mathrm{pl}}/\sqrt{1-\varepsilon}$.

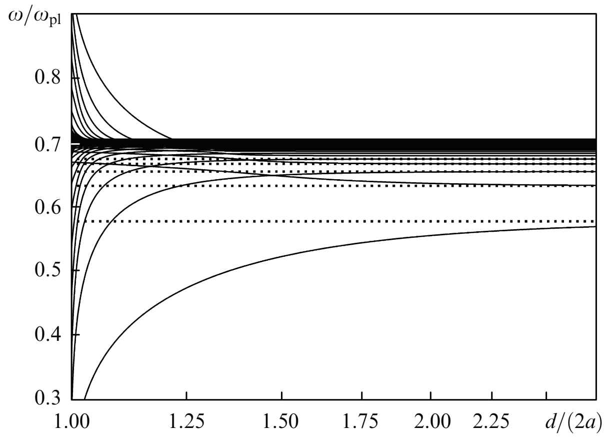

Рис.2. Резонансные частоты $\omega/\omega_{\mathrm{pl}}$ плазмонных колебаний в линейном кластере сферических наночастиц как функции параметра $d/(2a)$ при $m = 0$ и $k = 0$. Сплошные кривые – расчет с учетом 85 гармоник. Пунктирные линии соответствуют первым пяти резонансным значениям $\omega/\omega_{\mathrm{pl}} = \sqrt{l/(2l+1)}$ для одной сферы.

На рис.2 и 3 приведены резонансные частоты $\omega/\omega_{\mathrm{pl}}$ плазмонов как функции расстояния между частицами $d/(2a)$. Обратим внимание на то, что моды присутствуют как в низкочастотной области ($\omega/\omega_{\mathrm{pl}} < 1/\sqrt{2}$), так и в высокочастотной ($1/\sqrt{2} < \omega/\omega_{\mathrm{pl}} < 1$). Последние называются модами M типа и характеризуются сильной локализацией в зазоре между наночастицами. Впервые они были обнаружены сравнительно недавно [21, 39] при изучении плазмонных резонансов в кластере из двух наночастиц. В первую очередь следует обратить внимание на то, что эти моды могут возникать только на расстояниях, не превышающих $d/(2a) \approx 1.2$, причем это соотношение справедливо как для бесконечного линейного кластера, так и для кластера из двух сфер.

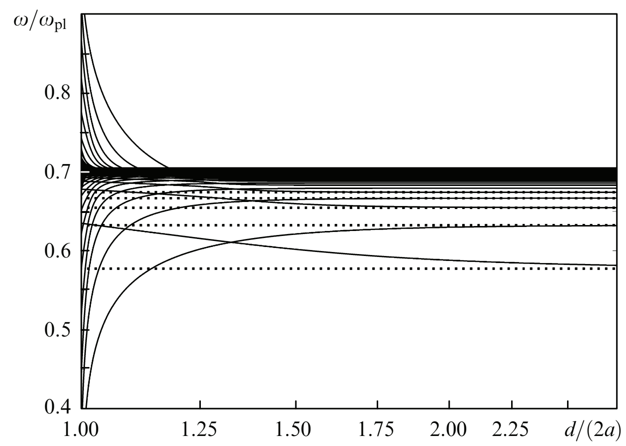

Рис.3. Резонансные значения $\omega/\omega_{\mathrm{pl}}$ плазмонных колебаний в линейном кластере сферических наночастиц как функции параметра $d/(2a)$ при $m = 1$ и $k = 0$. Сплошные кривые – расчет с учетом 85 гармоник. Пунктирные линии соответствуют первым пяти резонансным значениям $\omega/\omega_{\mathrm{pl}} = \sqrt{l/(2l+1)}$ для одной сферы.

По аналогии со случаем двух сфер [21, 39] на рис.2 и 3 можно выделить три типа дисперсионных кривых. Моды, резонансная частота которых стремится к нулю при уменьшении расстояния между частицами, соответствуют антисимметричным плазмонным колебаниям – L модам. Моды, резонансная частота которых стремится к конечной величине, лежащей между 0 и $\omega_{\rm pl}/\sqrt{2}$, соответствуют симметричным плазмонным колебаниям – T модам. Моды, плазмонные частоты которых стремятся к $\omega_{\rm pl}$, соответствуют сильно локализованным плазмонным колебаниям – M модам. Говоря о симметрии, мы имеем в виду, что плоскость симметрии перпендикулярна оси кластера и проходит посередине между двумя ближайшими сферами.

По мере увеличения отношения $d/(2a)$ резонансные частоты плазмонных мод кластера переходят в частоты $\omega/\omega_{\rm pl} = \sqrt{l/(2l+1)}$ ($l = 1, 2, ...$ при $m = 0$ и $l \geqslant m$ при $m \neq 0$) плазмонных колебаний различной мультипольности в одиночной сфере. При этом в случае $k = 0$ частоты антисимметричных мод стремятся к частотам $\omega/\omega_{\rm pl}$ с нечетными l при четных m и четными l при нечетных m. Частоты симметричных мод переходят в частоты с четными l при четных m и с нечетными l при нечетных m. В случае $kd = \pi$ ситуация аналогичная, но с учетом смены симметрии, т. е. частоты симметричных мод переходят в частоты с нечетными l при четных m и с четными l при нечетных m и т. д.

Рассмотрим теперь структуру потенциала, соответствующую различным модам (рис.4–9). Приведенные распределения потенциалов получены методом конечных элементов при решении уравнений Лапласа с помощью программы Comsol Multiphysics. При этом резонансные значения ε, полученные при решении системы (18), хорошо совпали с найденными при численном моделировании. Также нами проводилось сравнение полей внутри частиц, полученных аналитически и вычисленных с помощью программы Comsol, и было обнаружено их хорошее совпадение.

В осесимметричном случае ($m = 0$, рис.4 и 5) пространственная структура антисимметричного (L моды) и симметричного (T моды) потенциалов в целом соответствует структуре потенциала изолированной сферы при $l = 1$ и 2 соответственно: $\Phi \sim r^l P_l(\cos\theta)$. Взаимодействие между сферами в этом случае сводится лишь к некоторому количественному перераспределению потенциала. При этом L мода является светлой, т. е. имеет ненулевой (бесконечный) дипольный момент вдоль оси кластера и может быть возбуждена внешней плоской волной, в то время как T мода является темной.

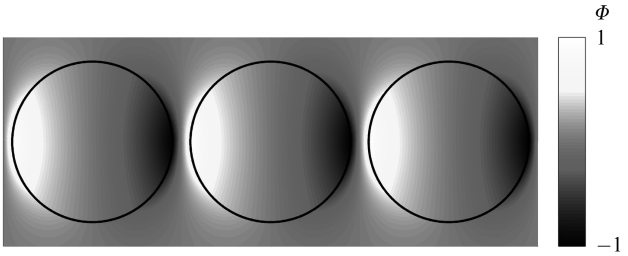

Рис.4. Пространственное распределение потенциала Φ моды L_1 при $m = 0$, $kd/\pi = 0$, $d/(2a) = 1.11$, $\varepsilon = -5.011$ и $\omega/\omega_{\rm pl} = 0.408$.

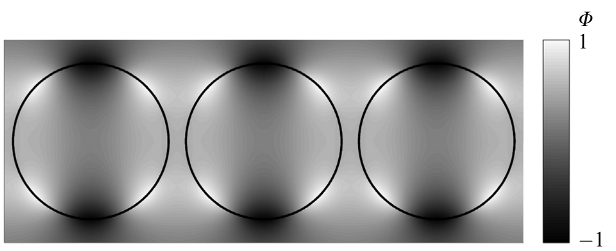

Рис.5. Пространственное распределение потенциала Φ моды T_1 при $m = 0$, $kd/\pi = 0$, $d/(2a) = 1.11$, $\varepsilon = -1.262$ и $\omega/\omega_{\rm pl} = 0.665$.

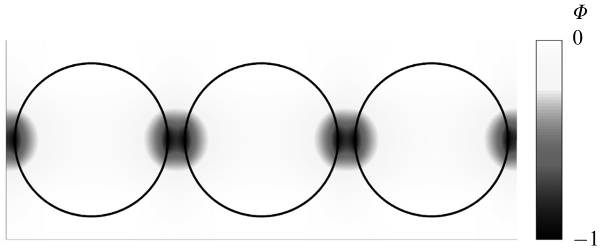

Рис.6. Пространственное распределение потенциала Φ моды M_1 при $m = 0$, $kd/\pi = 0$, $d/(2a) = 1.11$, $\varepsilon = -0.7721$ и $\omega/\omega_{\rm pl} = 0.751$.

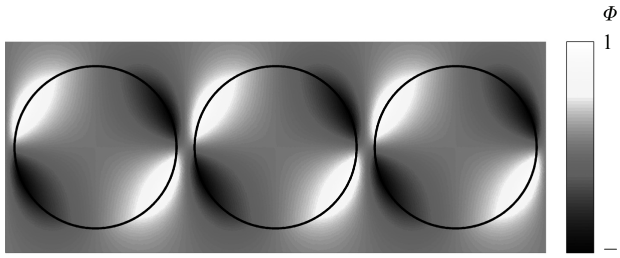

Рис.7. Пространственное распределение потенциала Φ моды L_1 при $m = 1$, $kd/\pi = 0$, $d/(2a) = 1.11$, $\varepsilon = -2.139$ и $\omega/\omega_{\rm pl} = 0.564$.

В случае симметричной M_1-моды ($m = 0$, рис.6) ситуация иная – мы имеем сильную концентрацию заряда одного знака вблизи щели между наносферами и более или менее равномерное распределение заряда другого знака по частице. На удаленных от зазора точках наносфер потенциал фактически обращается в нуль. Заметим, что для всех M мод характерна локализация зарядов вблизи щели между сферами. Однако, в отличие от M_1-моды, в случае M_2-моды в области щели сосредоточены как положительный, так и отрицательный заряд.

При $m = 1$ (рис.7 и 8) ситуация аналогичная – взаимодействие сводится к перераспределению заряда. Только при этом L мода становится темной и соответствует моде с $l = 2$ для одной сферы, а T мода оказывается светлой с дипольным моментом, направленным вдоль оси кластера, и соответствует моде с $l = 1$ для одной сферы. Моды M (рис.9) в данном случае тоже являются светлыми, однако как положительные, так и отрицательные заряды локализованы в области вблизи щели между наносферами.

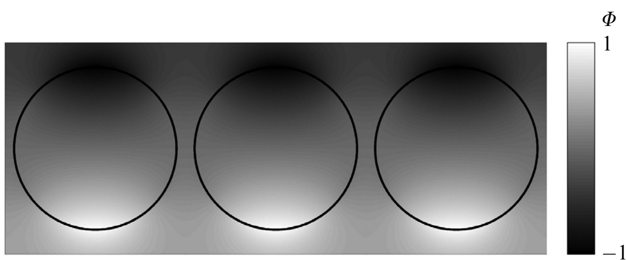

Рис.8. Пространственное распределение потенциала Φ моды T_1 при $m = 1$, $kd/\pi = 0$, $d/(2a) = 1.11$, $\varepsilon = -1.554$ и $\omega/\omega_{\rm pl} = 0.626$.

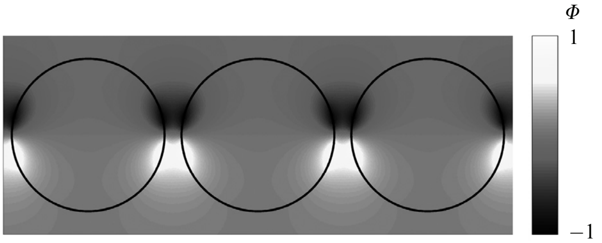

Рис.9. Пространственное распределение потенциала Φ моды M_1 при $m = 1$, $kd = 0$, $d/(2a) = 1.11$, $\varepsilon = -0.8595$ и $\omega/\omega_{\text{pl}} = 0.73$.

По мере увеличения расстояния между частицами в кластере локализация потенциала M моды ослабевает, и при критическом расстоянии между сферами $d/(2a) \approx 1.2$ локализованные плазмоны M типа исчезают, в то время как плазмоны L и T типов не испытывают существенных изменений, т. е. сохраняется их пространственная структура, а резонансные значения диэлектрической проницаемости становятся равными известным резонансным значениям для одной сферы.

4. Заключение

Разработано аналитическое описание плазмонных колебаний бесконечного линейного кластера сферических наночастиц. Получены зависимости резонансных значений диэлектрической проницаемости от волнового числа (вектора обратной решетки) и расстояния между сферами в кластере. Найдены соответствующие им пространственные распределения потенциала. Обнаружены ранее не известные высокочастотные моды с сильной локализацией потенциала в зазоре между частицами кластера – M моды. Результаты, полученные аналитически, сравнивались с результатами моделирования методом конечных элементов с помощью программы Comsol Multiphysics. Установлено их хорошее совпадение.

Таким образом, данная работа фактически исчерпывает исследование плазмонных колебаний линейного кластера сферических частиц в квазистатическом приближении. Учет запаздывания, конечно, повлияет на полученные результаты, особенно сильно в области частот $\omega = ck$, где c – скорость света. Результаты такого учета будут приведены в отдельной публикации.

Авторы благодарят РФФИ (гранты № 11-02-91065, 11-02-92002, 11-02-01272 и 11-02-12085) за финансовую поддержку настоящей работы.

1. Климов В.В. *Наноплазмоника* (М.: Физматлит, 2009).
2. Maier S.A., Brongersma M.L., Kik P.G., Meltzer S., Requicha A.A.G., Atwater H.A. *Adv. Mater.*, **13**, 1501 (2001).
3. Maier S.A., Kik P.G., Atwater H.A. *Phys. Rev. B*, **67**, 205402 (2003).
4. Maier S.A., Brongersma M.L., Kik P.G., Atwater H.A. *Phys. Rev. B*, **65**, 193408 (2002).
5. Maier S.A., Kik P.G., Atwater H.A., Meltzer S., Harel E., Koel B.E., Requicha A.A.G. *Nat. Mater.*, **2**, 229 (2003).
6. Maier S.A., Atwater H.A. *J. Appl. Phys.*, **98**, 011101 (2005).
7. Ozbay E. *Science*, **311**, 189 (2006).
8. Gramotnev D.K., Bozhevolnyi S.I. *Nat. Photonics*, **4**, 83 (2010).
9. Mie G. *Ann. Phys.*, **25**, 377 (1908).
10. Debye P.J.W. *Ann. Phys.*, **30**, 57 (1909).
11. Bergman D.J. *Phys. Rev. B*, **19**, 2359 (1979).
12. Gerardy J.M., Ausloos M. *Phys. Rev. B*, **22**, 4950 (1980).
13. Claro F. *Phys. Rev. B*, **25**, 2483 (1982).
14. Claro F. *Phys. Rev. B*, **30**, 4989 (1984).
15. Weber W.H., Ford G.W. *Phys. Rev. B*, **70**, 125429 (2004).
16. Brongersma M.L., Hartman J.W., Atwater H.A. *Phys. Rev. B*, **62**, R16356 (2000).
17. Koenderink A.F., Polman A. *Phys. Rev. B*, **74**, 033402 (2006).
18. Claro F. *Phys. Rev. B*, **25**, 7875 (1982).
19. Ruppin R. *Phys. Rev. B*, **26**, 3440 (1982).
20. Ruppin R. *J. Phys. Soc. Jpn.*, **58**, 1446 (1989).
21. Klimov V.V., Guzatov D.V. *Appl. Phys. A*, **89**, 305 (2007).
22. Vorobev P. *ЖЭТФ,* **137** (2), 220 (2010).
23. Gérardy M.J., Ausloos M. *Phys. Rev. B*, **25**, 4204 (1982).
24. Mackowski D.W. *J. Opt. Soc. Am. A*, **11**, 2851 (1994).
25. Xu Y.-L. *Appl. Opt.*, **34**, 4573 (1995).
26. Quinten M., Leitner A., Krenn J.R., Aussenegg F.R. *Opt. Lett.*, **23**, 1331 (1998).
27. Chern R.L., Liu X.X., Chang C.C. *Phys. Rev. E*, **76**, 016609 (2007).
28. Pinchuk A.O. *J. Phys. Chem. A*, **113**, 4430 (2009).
29. Khlebtsov B., Melnikov A., Zharov V., Khlebtsov N. *Nanotechnol.*, **17**, 1437 (2006).
30. Chen M.W., Chau Y.F., Tsai D.P. *Plasmonics*, **3**, 157 (2008).
31. Etchegoin P., Cohen L.F., Hartigan H., Brown R.J.C., Milton M.J.T., Gallop J.C. *Chem. Phys. Lett.*, **383**, 577 (2004).
32. Andersen A.C., Sotelo J.A., Niklasson G.A., Pustovit V.N. adsabs.harvard.edu/full/2004ASPC..309..709A.
33. Pinchuk A., Hilger A., von Plessen G., Kreibig U. *Nanotechnol.*, **15**, 1890 (2004).
34. Pinchuk A., Schatz G. *Nanotechnol.*, **16**, 2209 (2005).
35. Letnes P.A., Simonsen I., Mills D.L. *Phys. Rev. B*, **83**, 075426 (2011).
36. Demidenko Y., Makarov D., Lozovski V. *J. Opt. Soc. Am. B*, **27**, 12 (2010).
37. Ландау Л.Д., Лифшиц Е.М. *Квантовая механика. Нерелятивистская теория* (М.: Наука, 2008).
38. Danos M., Maximon L.C. *J. Math. Phys.*, **6**, 766 (1965).
39. Klimov V.V., Guzatov D.V. *Phys. Rev. B*, **75**, 024303 (2007).