

Анализ влияния квантового эффекта нелокальности в плазмонике с помощью метода дискретных источников

Ю. А. Еремин,^{1, а} И. В. Лопушенко^{2, б}

¹ Московский государственный университет имени М. В. Ломоносова, факультет вычислительной математики и кибернетики, кафедра математической физики. Россия, 119991, Москва, Ленинские горы, д. 1, стр. 52.

² Московский государственный университет имени М. В. Ломоносова, физический факультет, кафедра математики. Россия, 119991, Москва, Ленинские горы, д. 1, стр. 2.

Поступила в редакцию 02.07.2019, после доработки 21.08.2019, принята к публикации 05.09.2019.

В настоящей работе рассматривается математическая задача дифракции электромагнитных волн на плазмонном димере, составными частями которого являются наночастицы из благородных металлов с размерами, не превышающими десятка нанометров. Для построения математических моделей используется эффективный метод дискретных источников, позволяющий учитывать все особенности таких систем, включая форму частиц и возникающие в них эффекты пространственной дисперсии, также известные как эффекты нелокальности. Показано, что решение задачи в случае не зависящих от азимутальной гармоник внешних полей можно аппроксимировать с помощью системы вертикальных диполей на оси частицы. На основе гибридной схемы метода дискретных источников впервые решена задача возбуждения димера полем равномерно и прямолинейно движущегося точечного заряда в одномерном пространстве.

Ключевые слова: метод дискретных источников, наноплазмоника, эффект нелокальности, электронная спектроскопия.

УДК: 519.63 : 535.42. PACS: 02.60.Cb : 02.60.Lj : 42.25.Fx.

ВВЕДЕНИЕ

Благодаря стремительному развитию оптоэлектронных и фотонных устройств в настоящее время актуальными являются задачи анализа электромагнитных свойств плазмонных структур. Такие задачи, как правило, заключаются в необходимости точного определения положения максимума и амплитуды плазмонного резонанса (ПР). Данные характеристики зависят от материала составных частей структуры; ее формы и размеров; свойств окружающей среды и внешнего возбуждения, в качестве которого могут использоваться как плоские электромагнитные волны, так и другие источники, например электронные пучки, применяемые в методах электронной спектроскопии [1–4].

Особый интерес представляют исследования структур нанометровых масштабов как в силу их широкой распространенности в приложениях, так и в силу устойчивой тенденции к миниатюризации современных устройств. При этом если размер рассматриваемой структуры приближается к квантовому диапазону значений и составляет менее 10 нм, то классическая электродинамическая теория становится не применимой для описания возникающих физических эффектов. В этом случае для корректного моделирования свойств структуры необходим строгий учет эффектов пространственной дисперсии плазмонной среды, которые в современной периодической литературе получили название эффекта нелокальности (ЭНЛ). Данные эффекты существенно влияют на положение и амплитуду пика ПР, а также на структуру ближнего поля [2, 3, 5, 6].

Кроме того, учет ЭНЛ является совершенно необходимым при анализе кластеров наночастиц, в которых сами частицы могут быть достаточно крупными (> 30 нм). Существенное влияние ЭНЛ проявляется при таких расстояниях между частицами кластера, которые составляют от 0.5 до 5 нм. В тех случаях, когда расстояния между частицами составляют менее 0.5 нм, следует привлекать квантовые подходы, позволяющие учесть туннельный эффект, а при расстояниях, превышающих 5 нм, достаточно использовать классические подходы вычислительной электродинамики [6]. В настоящей работе предложен и проанализирован эффективный вычислительный подход на основе гибридной схемы метода дискретных источников (МДИ) для решения перечисленных типов задач.

1. ЭФФЕКТ НЕЛОКАЛЬНОСТИ

Математическое моделирование задач с учетом ЭНЛ в рамках существующих на сегодняшний день численных подходов сопряжено с рядом трудностей. Наиболее точные результаты, как правило, могут быть получены с помощью методов, основанных на квантовой теории, однако их основным недостатком является исключительная трудоемкость даже для систем с характерным размером порядка нанометра. В связи с этим широко используются вычислительные подходы на основе классической электродинамики, в рамках которых ЭНЛ может быть учтен с помощью рассмотрения продольных электромагнитных волн с волновым числом k_L наряду с поперечными электромагнитными волнами с волновым числом k_T внутри плазмонной структуры [5, 6]. При этом закон дисперсии продольных волн в среде определяется с использованием свойств свободных носителей заряда при помощи гидродинамической теории Друде (ГДТ) либо ее расширений, одно из которых

^а eremin@cs.msu.ru

^б lopushenko.ivan@physics.msu.ru

получило название теории обобщенного нелокального оптического отклика (ОНОО) [5–7]. Основной вычислительной сложностью при данном подходе является большая величина безразмерного продольного волнового числа $k_L a \gg k_T a$ (где a — характерный размер структуры), что приводит к необходимости рассмотрения быстро осциллирующих полей внутри частицы и к последующей необходимости введения мелких сеток в наиболее распространенных методах, опирающихся на дискретизацию пространства [6]. Следует отметить, что размер ячейки сетки во многих подходах, как правило, ограничен снизу, что приводит к существенным трудностям при моделировании.

В связи с этим для разрешения возникающих трудностей при исследовании плазменных частиц наиболее подходящими являются численно-аналитические поверхностно-ориентированные методы [6, 7]. Среди них определенными преимуществами обладает метод дискретных источников (МДИ), ключевыми особенностями которого являются возможность проведения апостериорной оценки точности, отсутствие процедур генерации сеток и интегрирования по поверхности рассеивателя, а также аналитический учет влияния подложки на рассеивающие свойства наночастиц [4, 6–10].

2. ПОСТАНОВКА ЗАДАЧИ

В настоящей работе в качестве плазменной структуры будем рассматривать либо одиночную наночастицу D_1 , либо димер из двух частиц D_1, D_2 с расстоянием d между ними. Пусть наша структура полностью находится в однородном пространстве D_0 , в котором распространяется поле внешнего возбуждения. Для анализа ЭНЛ с помощью МДИ необходимо записать полную математическую постановку задачи дифракции внешнего электромагнитного поля на данной системе при наличии продольных волн в плазменной среде:

$$\operatorname{rot} \mathbf{H}_p(M) = jk \left(\varepsilon_{T,p} \mathbf{E}_p(M) + \xi_p^2 \operatorname{grad} \operatorname{div} \mathbf{E}_{L,p}(M) \right),$$

$$\operatorname{rot} \mathbf{E}_p(M) = -jk\mu_p \mathbf{H}_p(M),$$

$$\mathbf{E}_p(M) = \mathbf{E}_{T,p}(M) + \mathbf{E}_{L,p}(M),$$

$$M \in D_p, \quad p = 1, 2,$$

$$\operatorname{rot} \mathbf{H}_0(M) = jk\varepsilon_0 \mathbf{E}_0(M),$$

$$\operatorname{rot} \mathbf{E}_0(M) = -jk\mu_0 \mathbf{H}_0(M),$$

$$\mathbf{E}_0(M) = \mathbf{E}_0^S(M) + \mathbf{E}_0^{\text{inc}}(M), \quad (1)$$

$$M \in D_0,$$

$$\mathbf{n}_K \times [\mathbf{E}_p(K) - \mathbf{E}_0^S(K)] = \mathbf{n}_K \times \mathbf{E}_0^{\text{inc}}(K),$$

$$\mathbf{n}_K \times [\mathbf{H}_p(K) - \mathbf{H}_0^S(K)] = \mathbf{n}_K \times \mathbf{H}_0^{\text{inc}}(K),$$

$$\mathbf{n}_K \cdot \varepsilon'_p \mathbf{E}_p(K) = \mathbf{n}_K \cdot \varepsilon_0 \mathbf{E}_0(K), \quad K \in \partial D_p, \quad p = 1, 2,$$

$$\lim_{r \rightarrow \infty} r \left(\sqrt{\varepsilon_0} \mathbf{E}_0^S(M) \times \frac{\mathbf{r}}{r} - \sqrt{\mu_0} \mathbf{H}_0^S(M) \right) = 0,$$

$$r = |M| \rightarrow \infty.$$

Следует особо отметить, что из-за появления новых неизвестных величин $\mathbf{E}_{L,p}$, соответствующих

напряженностям продольных электрических полей внутри частиц D_p ($p = 1, 2$), для обеспечения однозначной разрешимости поставленной задачи необходимо привлечение дополнительного граничного условия на поверхности частицы. В качестве этого условия будем использовать специальное условие разрыва нормальных компонент вектора напряженности электрического поля. Подробное обсуждение данного вопроса вместе с детальным обзором ГДТ и ОНОО можно найти, например, в работах [5] и [6].

Кроме того, в постановке задачи введены следующие обозначения: \mathbf{n}_K — внешняя единичная нормаль к поверхности p -й частицы ∂D_p в точке K , $\mathbf{E}_{T,p}$ — поле поперечных волн внутри p -й частицы, $\mathbf{E}_{L,p}$ — поле продольных волн внутри p -й частицы, $\mathbf{E}_0^{\text{inc}}$ — поле внешнего возбуждения в свободном пространстве D_0 , \mathbf{E}_0^S — рассеянное поле, $\varepsilon_{T,p}$ — экспериментально определенная диэлектрическая проницаемость материала p -й частицы, $k_{T,p}^2 = k^2 \varepsilon_{T,p} \mu_p$, $k = \omega/c$. С помощью ГДТ либо ОНОО определяются следующие величины: $\varepsilon_{L,p} = \varepsilon_{T,p} - \omega_{\text{pl},p}^2 / (j\gamma_p \omega - \omega^2)$ — вклад в диэлектрическую проницаемость частицы от связанных электронов и ионов с учетом межзонных переходов, $\xi_p^2 = \varepsilon_{L,p} (\beta_p^2 + Df_p(\gamma_p + j\omega)) / (\omega^2 - j\gamma\omega)$ — параметр, характеризующий масштаб пространственной нелокальности, $k_{L,p}^2 = \varepsilon_{T,p} / \xi_p^2$. Здесь Df_p — коэффициент диффузии электронов в p -й частице, $\beta_p^2 = 3/5 v_{F,p}^2$, $v_{F,p}$ — скорость Ферми, ω — частота колебаний электромагнитного поля, γ_p — частота столкновений электронов, $\omega_{\text{pl},p}$ — плазменная частота металла для p -й частицы. Следует отметить, что продольная компонента внутреннего поля в плазменной среде не вносит вклад в магнитное поле \mathbf{H}_p . Заметим также, что трехмерная задача дифракции (1) поставлена в общем виде без конкретизации типа внешнего возбуждения, в роли которого могут выступать как плоские линейно поляризованные волны, так и релятивистские электроны, траектория которых не пересекает границы частиц D_p .

В настоящей работе будем предполагать, что обе частицы димера являются осесимметричными. Пусть для простоты эти частицы располагаются на оси z , которая совпадает с их осями симметрии. Для задач дифракции плоской волны будем считать, что угол падения $\pi/2$ соответствует волне, распространяющейся перпендикулярно оси z , а в задачах с электронным пучком будем рассматривать поле точечного заряда, движущегося прямолинейно и равномерно вдоль оси z на расстоянии $\|\mathbf{b}\|$ от нее [4].

3. ГИБРИДНАЯ СХЕМА МЕТОДА ДИСКРЕТНЫХ ИСТОЧНИКОВ

В рамках МДИ решение задачи (1) — рассеянное поле вне частиц и полное поле внутри каждой частицы — строится в виде суперпозиции полей дискретных источников (ДИ). Такое представление обосновано в рамках хорошо разработанной теории МДИ, основополагающими элементами которой являются теоремы о полноте некоторых систем линейно независимых функций. В качестве примеров можно привести систему метагармонических функций Векуа с носителем в одной точке, систему

электрических и магнитных мультипольных источников, расположенных на оси вращения частицы, либо систему электрических и магнитных дипольных источников, расположенных на вспомогательной поверхности внутри частицы. Каждая из этих систем в силу своей полноты позволяет аппроксимировать любое внешнее поле на поверхности частицы определенной формы. В частности, в осесимметричных задачах особенно удобно пользоваться мультипольными источниками на оси, тогда как в полностью трехмерных задачах для неосесимметричных структур, как правило, используются дипольные источники на вспомогательной поверхности [9, 10]. Здесь также следует отметить, что вид ДИ упрощается вместе с усложнением структуры носителя ДИ.

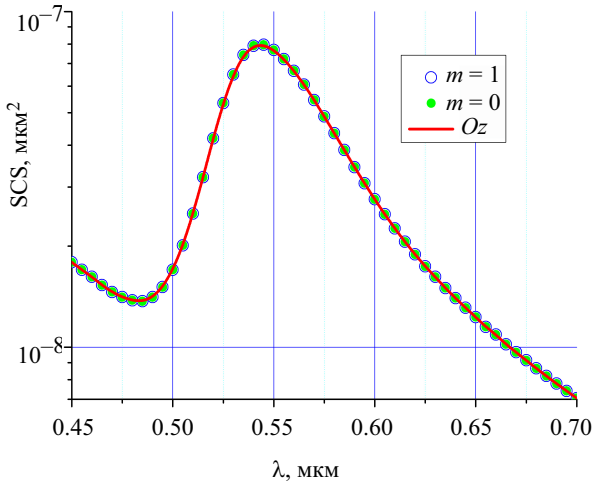


Рис. 1. Сечение рассеяния для одиночного вытянутого сфероида с эквивалентным диаметром 10 нм и соотношением осей 2 при падении плоской P-поляризованной волны под углом $\pi/2$. $m = 1$ — общее число гармоник 3; $m = 0$ — общее число гармоник 2; Oz — только вертикальные электрические диполи

Важный частный случай представляет собой аппроксимация полей, не зависящих от азимутальной гармоники φ . Примером такого поля может послужить плоская P-поляризованная волна, падающая на частицу под углом $\pi/2$ к оси z . Вычислительный эксперимент (рис. 1) показал, что при дифракции такой волны на одиночном плазмонном сфероиде для решения задачи дифракции в рамках МДИ достаточно привлечения только вертикальных электрических дипольных источников, расположенных на оси сфероида, что позволяет одновременно использовать и простую структуру носителя ДИ, и простой вид системы функций. Данное обстоятельство существенно упрощает построение эффективных вычислительных алгоритмов для задач дифракции таких полей, а также обеспечивает сохранение численной линейной независимости ДИ при уменьшении размера структуры, что играет большую роль при анализе тонких вытянутых частиц.

В связи с этими факторами вопрос обоснования полноты системы дипольных источников является актуальным. Для его решения рассмотрим систему полей вертикальных диполей

$$\mathbf{E}_n(M) = \text{rot rot} \{ \psi(M, z_n) \mathbf{e}_z \}, \quad (2)$$

где $\psi(M, z_n) = h_0^{(2)}(k_0 R_{Mz_n})$ — фундаментальное решение уравнения Гельмгольца во внешней трехмерной области, записанное с помощью сферической функции Ханкеля второго рода нулевого порядка. С помощью теоретического аппарата МДИ докажем, что при выполнении определенных условий данная система функций является полной.

Теорема. Пусть одиночная частица D_i — связанная осесимметричная область с гладкой поверхностью $\partial D_i \in C^{(2,\alpha)}$, внешняя область — $D_e = \mathbb{R}^2 \setminus \bar{D}_i$. Обозначим ось симметрии тела как Oz . Пусть множество точек $\{z_n\}_{n=1}^{\infty}$, лежащих на оси z , имеет внутри тела хотя бы одну точку сгущения. Тогда система (2) полна в $L_2^r(\partial D_i)$ — пространстве функций, касательных к образующей поверхности и независимых от φ .

Предположим, что существует функция $\mathbf{v} \in L_2^r(\partial D_i) : \|\mathbf{v}\| \neq 0$ такая, что

$$\int_{\partial D_i} \mathbf{E}_n(P) \cdot \mathbf{v}(P) d\sigma_P = 0, \quad \forall n. \quad (3)$$

В силу того, что ∂D_i осесимметрична, а ψ и \mathbf{v} не зависят от φ , то (3) можно переписать как

$$\int_{\partial D_i} \text{rot}_P \text{rot}_P \{ \psi(P, z_n) \mathbf{e}_z \} \cdot \mathbf{v}(P) d\sigma_P = 0,$$

для $\forall n, \mathbf{e}_i$ — декартов базис. Введем в рассмотрение функцию $V(z) = \int_{\partial D_i} \text{rot}_P \text{rot}_P \{ \psi(P, z_n) \mathbf{e}_i \} \cdot \mathbf{v}(P) d\sigma_P$.

Поскольку $\psi(M, z)$ — аналитическая по z на отрезке оси внутри тела (a, b) , то из (3) и свойств $\{z_n\}_{n=1}^{\infty}$ следует, что $V(z) = 0, z \in (a, b)$. Продолжим аналитически $V(z)$ с оси в полуплоскость. В [9] показано, что аналитическим продолжением $h_0^{(2)}(k_e R_{Mz_n})$ из оси в полуплоскость является функция кольцевого тока [11]

$$S_0(\xi, \zeta) = \int_0^{2\pi} \psi(M, P) d\varphi, \quad \psi(M, P) = h_0^{(2)}(k_e R_{MP}).$$

Покажем, что подобное аналитическое продолжение единственно. Предположим противное. Пусть существует функция $W(\xi), \xi = (\rho, z)$, отличная от нуля, такая, что $W(z) = 0, z \in (a, b)$. Как известно, любое регулярное решение уравнения Гельмгольца можно представить в виде разложения по сферическим функциям Бесселя. Тогда

$$W(\xi) = \sum_{n=0}^{\infty} \alpha_n j_n(k_e r) P_n(\cos \theta), \quad r^2 = \rho^2 + z^2.$$

Выберем начало координат на отрезке (a, b) , устремляя $\rho \rightarrow 0, \theta = 0$, получаем $W(z) = \sum_{n=0}^{\infty} \alpha_n j_n(k_e z) = 0$. Устремляя $z \rightarrow +0$ последовательно, получим $\alpha_0 = 0, \dots, \alpha_n = 0, \dots$. Утверждение доказано. Таким образом, имеем

$$\int_{\partial D_i} \text{rot}_P \text{rot}_P \left\{ \int_0^{2\pi} \psi(M, P) d\varphi \mathbf{e}_i \right\} \cdot \mathbf{v}(P) d\sigma_P = 0.$$

Используя преобразования векторного анализа [9], получим

$$\begin{aligned} & \int_{\partial D_i} \text{rot}_P \text{rot}_P \left\{ \int_0^{2\pi} \psi(M, P) d\varphi \mathbf{e}_i \right\} \cdot \mathbf{v}(P) d\sigma_P = \\ & = \mathbf{e}_i \text{rot}_M \text{rot}_M \int_{\partial D_i} \left\{ \int_0^{2\pi} \psi(M, P) d\varphi \right\} \cdot \mathbf{v}(P) d\sigma_P = 0. \end{aligned}$$

Следовательно,

$$\text{rot}_M \text{rot}_M \int_{\partial D_i} \left\{ \int_0^{2\pi} \psi(M, P) d\varphi \right\} \cdot \mathbf{v}(P) d\sigma_P = 0,$$

$$M \in D_i.$$

Далее действуем по схеме [9, 10]:

1. Введем в рассмотрение потенциал $\mathbf{A}(M) = \int_{\partial D_i} \left\{ \int_0^{2\pi} \psi(M, P) d\varphi \right\} \cdot \mathbf{v}(P) d\sigma_P$ и поля $\mathbf{E}(M) = \frac{j}{k_e \varepsilon_e} \text{rot rot } \mathbf{A}(M)$, $\mathbf{H}(M) = \frac{j}{k_e} \text{rot } \mathbf{A}(M)$.

2. Так как $\mathbf{A}(M)$ представляет аналитическую функцию во внутренней области, то $\mathbf{H}(M) = 0$ в D_i . Устремляя точку к поверхности ∂D_i , $\lim_{h \rightarrow +0} (\mathbf{n}_P \times \mathbf{H}(P - h\mathbf{n}_P)) = 0$, $P \in \partial D_i$, и используя свойства потенциала двойного слоя, получим почти всюду на образующей ∂D_i уравнение Фредгольма 2-го рода с гладким ядром [12] и аналитической правой частью. Используя свойства резольвенты этого уравнения [13], установим, что $\mathbf{v} \in C_\tau^{(1, \alpha)}$.

3. Следовательно, $\lim_{h \rightarrow +0} (\mathbf{n}_P \times \mathbf{E}(P - h\mathbf{n}_P)) = \lim_{h \rightarrow +0} (\mathbf{n}_P \times \mathbf{E}(P + h\mathbf{n}_P)) = 0$, $P \in \partial D_i$ [14].

4. Таким образом, во внешней области D_e получаем граничную задачу для поля \mathbf{E}

$$\begin{aligned} & [\mathbf{E}(P) \times \mathbf{n}_P] = 0, \quad P \in \partial D_i, \\ & \Delta \mathbf{E}(M) + k_e^2 \mathbf{E}(M) = 0, \quad M \in D_e, \\ & \text{условия излучения на } \infty. \end{aligned}$$

Следовательно, $\mathbf{E}(M) = 0 \Rightarrow \mathbf{H}(M) = 0$, $M \in D_e$.

5. Беря скачок тангенциальных компонент поля \mathbf{H} на поверхности ∂D_i , получим $[\mathbf{n} \times \mathbf{H}]_+ - [\mathbf{n} \times \mathbf{H}]_- = \mathbf{v}(P) = 0$, $P \in \partial D_i$. Это означает, что полнота системы вертикальных электрических диполей (2) доказана. ■

Кроме того, как следует из вычислительного эксперимента и оценки, проведенной в работе [8], основной вклад в рассеяние небольших плазмонных частиц с размером до 10 нанометров вносит именно независимая от φ гармоника. Это потенциально дает возможность использовать систему вертикальных и горизонтальных электрических и магнитных дипольных источников, распределенных вдоль оси внутри каждой частицы указанных размеров, для аппроксимации на ее поверхности внешнего поля плоской волны, падающей под произвольным углом. Важным обстоятельством является тот факт, что такие системы источников могут быть использованы

при решении задач дифракции на кластерах осесимметричных наночастиц как в свободном пространстве, так и при наличии подложки в среде с помощью учета тензора Грина в структуре ДИ по аналогии с [8]. При этом в рамках рассматриваемой схемы совокупность частиц кластера и плоской границы раздела сред может являться трехмерной неосесимметричной структурой, применение уже существующих схем МДИ к которой вызывает некоторые трудности, связанные как с возможной численной линейной зависимостью источников, так и с отсутствием возможности учета осевой симметрии всей задачи.

Таким образом, полученный результат позволяет нам построить рассеянное поле вне частиц в задаче (1) на основе решений уравнения Гельмгольца для векторных потенциалов электромагнитного поля во внешней области. Вводя обозначения для неизвестных амплитуд электрических источников v и неизвестных амплитуд магнитных источников q , представление для рассеянного поля принимает вид

$$\begin{aligned} \mathbf{E}_N^S(M) &= \sum_{n=1}^{N=N_1+N_2} \sum_{\alpha=x,y,z} \left(v_{\alpha,n}^0 \frac{j}{k \varepsilon_0 \mu_0} \text{rot rot } \mathbf{A}_{\alpha,n}^e + \right. \\ & \quad \left. + q_{\alpha,n}^0 \frac{1}{\varepsilon_0} \text{rot } \mathbf{A}_{\alpha,n}^e \right), \\ \mathbf{H}_N^S(M) &= \frac{j}{k \mu_0} \text{rot } \mathbf{E}_N^S(M, M_n). \end{aligned}$$

Оно автоматически удовлетворяет уравнениям Максвелла и условиям излучения на бесконечности. Аналогичным образом можно построить полное поле внутри каждой из частиц на основе решений уравнений Гельмгольца, независимо описывающих продольную и поперечную компоненты электромагнитного поля в плазмонной среде, что обеспечивает корректный учет ЭНЛ [6, 7, 15]. При этом в соответствии с доказанным утверждением теоремы и в рамках выдвинутых предположений на размер изучаемых частиц все полученные системы функций выбираются с нулевой и первой гармониками по φ и их носители размещаются внутри каждой из частиц. Тогда представления для внутренних полей удовлетворяют уравнениям Максвелла внутри D_p , $p = 1, 2$ и принимают вид

$$\begin{aligned} \mathbf{E}_L^{N_p}(M) &= \text{grad} \sum_{n=1}^{N_p} \left(v_{1,n}^L j_0(k_{L,p} R_{MM_n}) + \right. \\ & \quad \left. + j_1(k_{L,p} R_{MM_n}) \sin \Theta (v_{2,n}^L \cos \phi + v_{3,n}^L \sin \phi) \right), \\ \mathbf{E}_T^{N_p}(M) &= \sum_{n=1}^{N_p} \sum_{\alpha=x,y,z} \left(v_{\alpha,n}^T \frac{j}{k \varepsilon_T \mu_i} \text{rot rot } \mathbf{A}_{\alpha,n}^i + \right. \\ & \quad \left. + q_{\alpha,n}^T \frac{1}{\varepsilon_T} \text{rot } \mathbf{A}_{\alpha,n}^i \right), \\ \mathbf{H}_i^{N_p}(M) &= \frac{j}{k \mu_i} \text{rot} (\mathbf{E}_T^N(M, M_n) + \mathbf{E}_L^N(M, M_n)). \end{aligned}$$

Здесь M — точка наблюдения, M_n — точка, в которой располагается источник, N_p — число точек с источниками внутри частицы D_p , векторные потенциалы внешних и внутренних источников поперечных волн

$$\begin{aligned} \mathbf{A}_{x,n}^e &= h_0^{(2)}(k_0 R_{MM_n}) \mathbf{e}_x, & \mathbf{A}_{y,n}^e &= h_0^{(2)}(k_0 R_{MM_n}) \mathbf{e}_y, \\ \mathbf{A}_{z,n}^e &= h_0^{(2)}(k_0 R_{MM_n}) \mathbf{e}_z, \\ \mathbf{A}_{x,n,p}^i &= j_0(k_{T,p} R_{MM_n}) \mathbf{e}_x, & \mathbf{A}_{y,n,p}^i &= j_0(k_{T,p} R_{MM_n}) \mathbf{e}_y, \\ \mathbf{A}_{z,n,p}^i &= j_0(k_{T,p} R_{MM_n}) \mathbf{e}_z, \end{aligned}$$

$h_n^{(2)}(\cdot)$ — сферическая функция Ханкеля второго рода порядка n , $j_n(\cdot)$ — сферическая функция Бесселя порядка n , \mathbf{e}_α — один из орт введенной декартовой системы координат, $R_{MM_n}^2 = (x - x_n)^2 + (y - y_n)^2 + (z - z_n)^2$. Система указанных дипольных ДИ размещается в наборе точек $\{M_n\}$ на оси симметрии внутри каждой из частиц кластера в соответствии с изложенной выше концепцией.

Для решения задачи необходимо обеспечить выполнение условий сопряжения полей на поверхности частиц. Для этого используется обобщенный метод коллокаций с распределением точек шивки полей по всей поверхности для каждой из частиц, который приводит к переопределенной системе линейных уравнений относительно неизвестных амплитуд ДИ. Амплитуды ДИ определяются как нормальное псевдорешение данной системы с использованием регуляризации А. Н. Тихонова в норме l_2 . Вычислив амплитуды ДИ, мы таким образом получаем полную информацию о рассеянном поле и можем без труда анализировать такие характеристики структуры, как дифференциальное (*DSC*) либо полное (*SCS*) сечения рассеяния, определенные через диаграмму направленности F (в случае дифракции плоской волны) [7]:

$$\begin{aligned} \mathbf{E}_0^S(M) / |\mathbf{E}_0^{\text{inc}}(M)| &= \frac{\exp\{-jk_0 R\}}{R} \mathbf{F}(\theta_0, \theta, \varphi) + \\ &+ O(1/R^2), \quad R \rightarrow \infty, \quad z > 0, \end{aligned}$$

$$\text{DSC}(\theta_0, \theta, \varphi) = |F_\theta(\theta_0, \theta, \varphi)|^2 + |F_\varphi(\theta_0, \theta, \varphi)|^2,$$

$$\text{SCS}(\theta_0) = \int_{\Omega} \text{DSC}(\theta_0, \theta, \varphi) d\Omega.$$

Здесь Ω — единичная сфера, $\{R, \theta, \varphi\}$ — сферические координаты точки M , соответствующие выбранным ранее декартовым координатам. В частности, с помощью данных определений получены результаты на рис. 1.

Еще одним важным прикладным случаем внешнего поля является поле релятивистского электрона, движущегося прямолинейно вдоль плазменной структуры и претерпевающего небольшие потери энергии. Такие поля возникают в задачах спектроскопии характеристических потерь энергии электронами (Electron Energy Loss Spectroscopy, EELS) и в пространстве Фурье обладают лишь нулевой и первой гармониками по φ . В качестве спектра EELS анализируется вероятность потерь энергии электронами во всем диапазоне частот, которая определяется как интеграл вдоль его траектории движения [4, 15]:

$$P(\omega) = \frac{e}{\pi \hbar \omega} \int_{-\infty}^{+\infty} \text{Re} \left\{ \mathbf{E}_0^S(\mathbf{r}_e, \omega) e^{-i\omega z/v} \right\} d\mathbf{r}_e.$$

Здесь \hbar — приведенная постоянная Планка, e — заряд электрона, \mathbf{r}_e — радиус-вектор электрона, v — скорость электрона.

Развитый подход получил название гибридной схемы МДИ благодаря использованию одновременно электрических и магнитных диполей на оси частицы и в последнее время был успешно апробирован в ряде задач, включающих как задачи дифракции плоских электромагнитных волн, так и задачи EELS. Поскольку гибридная схема разработана специально для анализа частиц с небольшим поперечным сечением (< 10 нм), она является хорошо приспособленной для корректного и эффективного анализа ЭНЛ в рассмотренных нами полностью трехмерных задачах [7, 8, 15].

4. СПЕКТРОСКОПИЯ ХАРАКТЕРИСТИЧЕСКИХ ПОТЕРЬ ЭНЕРГИИ ЭЛЕКТРОНАМИ НА ПЛАЗМОННОМ ДИМЕРЕ

Одним из последних результатов в рамках разработки гибридной схемы МДИ является решение задачи (1) в случае дифракции электронного пучка на плазмонном димере. Для апробации вычислительного алгоритма использовался димер из двух серебряных наночастиц сферической формы. Во внешнем пространстве материальные характеристики среды равны $\epsilon_0 = \mu_0 = \mu_i = 1$. Расчетные параметры модели ОНОО выбираются в соответствии с работой [5]: плазменная частота серебра $\hbar\omega_p = 8.99$ эВ, коэффициент затухания Друде $\hbar\gamma = 0.025$ эВ, скорость Ферми $v_F = 1.39 \cdot 10^6$ мс⁻¹ и постоянная диффузии $D = 3.61 \cdot 10^{-4}$ м²с⁻¹. Кроме того, положим прицельный параметр равным $\mathbf{b} = (b_x, b_y)$, где $b_x = 2.3$ нм, $b_y = 0$, а скорость внешнего электрона $\|\mathbf{v}\| = 50$ кэВ.

На рис. 2 приведены графики вероятности потерь энергии электроном при его дифракции на одиночной сферической сфере и для случая, когда электрон поочередно проходит вблизи идентичных сфер с расстоянием d между ними. Видно, что при достаточно больших значениях d взаимодействие между двумя сферами пренебрежимо мало и электрон теряет ровно вдвое больше энергии, чем при дифракции на одиночной сфере. Данный результат справедлив

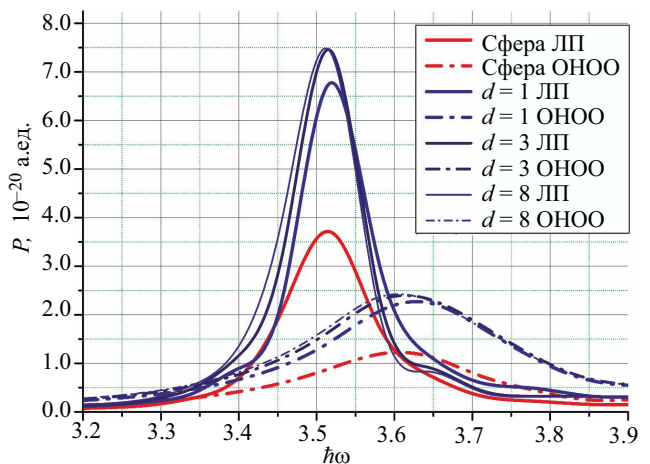


Рис. 2. Спектр EELS для одиночной сферы (красные линии) и для димера из двух Ag наночастиц радиусом $a = 2$ нм с варьируемым расстоянием d между ними. Сплошные линии — результаты без учета ЭНЛ. Пунктирные линии — результаты с учетом ЭНЛ в рамках модели ОНОО

и в локальном случае (локальное приближение, ЛП), и в случае учета ЭНЛ с помощью теории ОНОО. При уменьшении зазора между частицами наблюдается сдвиг резонансной частоты ПР в высокочастотную область. Учет ЭНЛ даже в данной простой системе приводит к тому, что значения частоты ПР всей структуры существенно отличаются от результатов, полученных в отсутствие продольных волн в плазмонной среде.

Напомним, что при увеличении размеров рассеивающей структуры и при одновременном увеличении расстояния между частицами кластера роль эффектов пространственной дисперсии в плазмонной среде значительно снижается и решение задачи ЭНЛ с хорошей степенью точности совпадает с решением классической электромагнитной задачи дифракции для уравнений Максвелла без продольных волн [6, 7].

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Эффективные вычислительные схемы на основе метода дискретных источников позволяют строго учитывать ЭНЛ и детально исследовать его влияние на характер взаимодействия плазмонных наноструктур с различными электромагнитными полями, в том числе на сдвиг частоты ПР. При этом для полностью трехмерных задач с характерными размерами плазмонных частиц от 1 до 10 нм обосновано применение модифицированной схемы МДИ, получившей название гибридной, в которой используется более узкий класс линейно независимых функций при гарантированной точности результата. В рамках гибридной схемы впервые построено решение задачи дифракции электронного пучка EELS на плазмонном димере и реализован соответствующий вычислительный алгоритм. Гибридная схема допускает обобщение на случай задач дифракции в слоистых средах.

Работа выполнена при финансовой поддержке германо-русского междисциплинарного научного центра (German—Russian Interdisciplinary Science Center, G-RISC) в рамках программы германской службы академических обменов (DAAD) по проекту M-2018b-7.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Климов В. В.* Наноплазмоника. М.: ФИЗМАТЛИТ, 2010.
2. *de Abajo F. J. G.* // J. Phys. Chem. C. 2008. N 112. P. 17983.
3. *Toscano G., Raza S., Jauho A.-P.* et al. // Opt. Exp. 2012. N 20. P.4176.
4. *Wriedt T., Eremin Yu.* (Eds.) The Generalized Multipole Technique for Light Scattering. Springer International Publishing AG, 2018.
5. *Raza S., Bozhevolnyi S. I., Wubs M., Mortensen N. A.* // J. Phys.: Condens. Matter. 2015. **27**. P. 183204.
6. *Eremin Y., Doicu A., Wriedt T.* // Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer. 2018. **217**. P. 35.
7. *Еремин Ю. А., Лопушенко И. В.* // Вестн. Моск. ун-та. Сер. 15: Вычисл. матем. и киберн. 2017. № 4. С. 14.
8. *Еремин Ю. А., Лопушенко И. В.* // Вестн. Моск. ун-та. Сер. 15: Вычисл. матем. и киберн. 2016. № 1. С. 3.
9. *Eremin Yu. A., Orlov N. V., Sveshnikov A. G.* Generalized Multipole Techniques for Electromagnetic and Light Scattering. Elsevier Science, Amsterdam, 1999. P. 39.
10. *Doicu A., Eremin Yu., Wriedt T.* Acoustic and Electromagnetic Scattering Analysis Using Discrete Sources. Academic Press, 2000.
11. *Васильев Е. Н.* Возбуждение тел вращения. М.: Радио и связь, 1987.
12. *Дмитриев В. И., Захаров Е. В.* Метод интегральных уравнений в вычислительной электродинамике. М.: МАКС Пресс, 2008.
13. *Купрадзе В. Д.* // УМН. 1967. **22**, № 2. С. 58.
14. *Колтон Д., Кресс. Р.* Методы интегральных уравнений в теории рассеяния. М.: Мир, 1987.
15. *Лопушенко И. В.* // Ученые записки физ. ф-та Моск. ун-та. 2018. № 6. 1860602.

An Analysis of the Quantum Effect of Nonlocality in Plasmonics Using the Discrete Sources Method

Yu. A. Eremin^{1,a}, I. V. Lopushenko^{2,b}

¹*Mathematical Physics Department, Faculty of Computational Mathematics and Cybernetics,*

²*Department of Mathematics, Faculty of Physics, Lomonosov Moscow State University. Moscow 119991, Russia.*

E-mail: ^aeremin@cs.msu.ru, ^blopushenko.ivan@physics.msu.ru.

We consider the mathematical problem of electromagnetic wave scattering by a plasmonic dimer composed of noble metal nanoparticles with sizes less than tens of nanometers. To develop mathematical models, the efficient discrete sources method is used, which makes it possible to take all peculiar features of such systems into account, including the shapes of particles and the effects of spatial dispersion, which are also known as nonlocal effects. It is shown that in the case of external fields that are independent of the azimuthal harmonics, it is possible to approximate the problem solution using the system of vertical dipoles on the axis of symmetry of the particle. Based on the hybrid scheme of the discrete sources method, the problem of excitation of a dimer by the field of a point charge in uniform straight motion in a homogeneous space is first solved.

Keywords: discrete sources method, nanoplasmonics, nonlocal effect, electron spectroscopy.

PACS: 02.60.Cb : 02.60.Lj : 42.25.Fx.

Received 02 July 2019.

English version: *Moscow University Physics Bulletin*. 2019. **74**, No. 6. Pp. 570–576.

1. Еремин Юрий Александрович — вед. науч. сотрудник; тел.: (495) 939-17-76, e-mail: eremin@cs.msu.su.
2. Лопушенко Иван Владимирович — техник; тел.: (495) 939-10-33, e-mail: lopushenko.ivan@physics.msu.ru.