

УДК 537.5

В. А. Астапенко, С. В. Сажно, Т. К. Бергалиев

Московский физико-технический институт (государственный университет)

Возбуждение плазмонных резонансов в металлических кластерах ультракороткими электромагнитными импульсами

Рассчитана и проанализирована вероятность поглощения ультракороткого импульса на металлических кластерах в области плазмонного резонанса за все время действия импульса. Рассмотрен случай импульсов с несущей частотой и электромагнитных всплесков (вейвлетов) без несущей частоты. Выявлены особенности временной зависимости вероятности процесса, характерные для малых длительностей импульса.

Ключевые слова: ультракороткий электромагнитный импульс, металлический кластер, скорректированный гауссов импульс, вейвлет-импульс, плазмонный резонанс.

V. A. Astapenko, S. V. Sakhno, T. K. Bergaliyev

Moscow Institute of Physics and Technology (State University)

Excitation of plasmon resonances in the metal clusters by ultrashort electromagnetic pulses

The probability of absorption of an ultrashort pulse by metal clusters in the vicinity of plasmon resonance during the pulse action is calculated and analyzed. (в начале пред. чаще определенный apr) The case of pulses with carrier frequency and electromagnetic bursts (wavelets) without carrier frequency is considered too. The features of the time dependence of the process probability, which are characteristic of short pulse durations, are found.

Key words: ultrashort pulse, metal cluster, corrected gaussian pulse, wavelet-pulse, plasmon resonance.

1. Введение

Развитие техники генерации ультракоротких электромагнитных импульсов (УКИ) делает актуальным исследование особенностей их взаимодействия с различными мишенями [1]. Настоящая статья посвящена теоретическому исследованию поглощения УКИ на металлических кластерах. Особенностью таких кластеров является то, что их валентные электроны не локализованы в пространстве и их можно рассматривать как находящиеся в поле положительно заряженных ионов. Для упрощения рассмотрения подобных структур предлагаются различные модели, например т.н. «модель желе» [2], которая подразумевает, что ионы распределены однородно и сферически симметрично в некотором объеме пространства, в поле которых движутся обобществленные (валентные) электроны. При воздействии внешнего излучения на определенной частоте валентные электроны совершают коллективные колебания вблизи поверхности кластера, т.е. возбуждаются поверхностные плазмоны [3], характерная частота которых (в энергетических единицах) составляет несколько электронвольт. Следует отметить, что существуют и другие механизмы генерации плазмонов в атомарных кластерах. Например, в ксеноновых кластерах плазмонные возбуждения формируются в результате коллективного движения электронов 4d-оболочки [4], в этом случае энергия плазмонов порядка 100 эВ.

Радиус металлического кластера зависит от количества атомов в нем (N) и в типичном случае составляет величину порядка 1 нм и меньше (для $N \sim 10-100$). Этим металлические

кластеры отличаются от металлических наносфер, характерный радиус которых обычно лежит в пределах от 10 до 50 нм. Поскольку число атомов в металлических наносферах достаточно велико и присутствует резкая граница, то для описания их взаимодействия с электромагнитным полем оптического диапазона можно использовать теорию Ми. Поглощение УКИ на металлических наносферах, помещенных в диэлектрическую среду, исследовалось в работе [5]. В случае металлических кластеров с небольшим числом атомов, когда отсутствует резкая граница, расчет поглощения на них электромагнитного излучения требует другого подхода.

В данной работе в рамках первого порядка теории возмущений исследуются особенности поглощения УКИ на металлических кластерах малого радиуса ($R < 1$ нм) в области плазмонного резонанса за все время действия электромагнитного поля.

2. Метод расчета

Вероятность возбуждения атома (иона) под действием ультракороткого импульса в первом порядке теории возмущений по взаимодействию с электромагнитным полем дается следующим выражением [5]:

$$W = \frac{c}{4\pi^2} \int_0^\infty \sigma(\omega') \frac{|E(\omega')|^2}{\hbar\omega'} d\omega', \quad (1)$$

где c – скорость света, ω' – текущая частота, $\sigma(\omega')$ – сечение поглощения, $E(\omega')$ – фурье-образ напряженности электрического поля электромагнитного импульса. Очевидно, что выражение (1) имеет смысл в рамках применимости теории возмущений, т.е. при $W < 1$.

Как следует из оптической теоремы [2], сечение фотопоглощения выражается через динамическую поляризуемость $\alpha(\omega)$ согласно формуле

$$\sigma_{abs}(\omega) = \frac{4\pi\omega}{c} \text{Im} \alpha(\omega). \quad (2)$$

Динамическая поляризуемость металлического кластера в резонансном плазмонном приближении равна [7, 8]

$$\alpha(\omega) = R^3 \frac{\omega_p^2}{\omega_p^2 - \omega^2 - i\omega\Gamma}, \quad (3)$$

где ω_p – резонансная частота поверхностного плазмона, Γ – ширина резонансной кривой. Радиус металлического кластера R в модели желе равен [2]:

$$R(N) = r_{ws} N^{1/3}, \quad (4)$$

где N – число атомов в кластере, r_{ws} – размер ячейки Вигнера–Зейца металла.

Частота плазмонного резонанса дается следующим выражением:

$$\omega_p(N) = \sqrt{\frac{N}{\chi R^3(N)}}, \quad (5)$$

где χ – коэффициент, учитывающий сдвиг плазмонного резонанса, который обуславливается экранировочным воздействием ионов в металлическом кластере. Подставляя (4) в (5), видим, что в рассматриваемом приближении частота плазмонного резонанса не зависит от числа атомов в кластере:

$$\omega_p(N) = \frac{1}{\sqrt{\chi r_{ws}^3}}. \quad (6)$$

Формулы (5) и (6) записаны в атомной системе единиц, в которой $m_e = e = \hbar = 1$. Используя равенства (2) – (6), находим окончательное выражение для сечения фотопоглощения в области плазмонного резонанса:

$$\sigma_{abs}(\omega) = \frac{4\pi R^3}{c} \frac{\omega_p^2 \omega^2 \Gamma}{(\omega_p^2 - \omega^2)^2 + \omega^2 \Gamma^2}. \quad (7)$$

Подставляя (7) в (1), получаем формулу для полной вероятности фотопоглощения УКИ на металлическом кластере:

$$W = \frac{R^3 \omega_p^2(R) \Gamma}{\pi \hbar} \int_0^\infty \frac{|E(\omega')|^2 \omega'}{(\omega_p^2(R) - \omega'^2)^2 + \omega'^2 \Gamma^2} d\omega'. \quad (8)$$

В качестве воздействующих на металлический кластер ультракоротких импульсов рассмотрим скорректированный гауссовский импульс, а также синус- и косинус-вейвлет импульсы без несущей частоты.

Квадрат модуля фурье-образа скорректированного гауссовского импульса имеет вид [9, 10]:

$$|E_{cor}(\omega')|^2 \cong E_0^2 \tau^2 \frac{\pi}{2} \left[\frac{\omega'^2 \tau^2}{1 + \omega'^2 \tau^2} \right]^2 \exp\left(-(\omega - \omega')^2 \tau^2\right), \quad (9)$$

где ω' – текущая частота, E_0 – амплитуда напряженности электромагнитного поля, τ – длительность импульса, ω – несущая частота. Фурье-образы синус- и косинус-вейвлетов имеют следующие выражения соответственно:

$$E_s(\omega) = 2i \sqrt[4]{\pi} \omega \tau^2 E_0 \exp(-\omega^2 \tau^2 / 2), \quad (10)$$

$$E_c(\omega) = 2\sqrt{2/3} \sqrt[4]{\pi} \omega^2 \tau^3 E_0 \exp(-\omega^2 \tau^2 / 2). \quad (11)$$

Особенностью данных вейвлет-импульсов является отсутствие у них несущей частоты, таким образом, их спектр зависит только от длительностью УКИ. Далее, для представления результатов вычислений мы будем использовать нормированную вероятность фотопоглощения:

$$\tilde{W} = \frac{W}{E_0^2}. \quad (12)$$

3. Обсуждение результатов

Расчеты были проведены для кластера Na_8 , для которого резонансная частота поверхностного плазмона $\omega_p = 2.48$ эВ, ширина резонанса $\Gamma \sim 0.1\omega_p$ [11], размер ячейки Вигнера–Зейца $r_{ws} = 3.93$ а.е., $\chi = 1.98$, $R = 0.4$ нм. Введем параметр относительной отстройки несущей частоты УКИ от плазмонной частоты:

$$\delta = \frac{|\omega - \omega_p|}{\omega_p} 100\%.$$

Ниже приведены графики с результатами вычислений для нормированной вероятности поглощения УКИ (12) как функции длительности импульса и несущей частоты.

На рис. 1 приведены зависимости нормированной вероятности фотопоглощения УКИ скорректированной гауссовской формы от длительности импульса при различных несущих частотах излучения. Видно, что эти зависимости имеют нелинейный характер при длительностях электромагнитного импульса порядка нескольких фемтосекунд. При больших значениях длительностей зависимости выходят на линейный режим, что соответствует случаю длинных импульсов: $\omega\tau \gg 1$.

Из рис. 1 также видно, что при $\omega = \omega_p$ зависимость нормированной вероятности квадратично возрастает (точечная кривая; для улучшения отображения масштаб по оси ординат для нее уменьшен в 5 раз) и при $\tau > 2$ фс выходит на линейный режим. При малых частотных отстройках δ от частоты плазмонного резонанса ω_p угол наклона кривой уменьшается (штрихпунктирная кривая, $\delta \approx 6\%$). С увеличением отстройки δ у сплошной кривой появляется перегиб в диапазоне длительностей УКИ $1 \text{ фс} < \tau < 2 \text{ фс}$ ($\delta \approx 29\%$), после чего она также выходит на линейный режим. При дальнейшем увеличении отстройки на кривой появляется характерный максимум (пунктирная кривая, $\tau \sim 1 \text{ фс}$; $\delta \approx 36\%$), после которого также осуществляется переход в линейный режим.

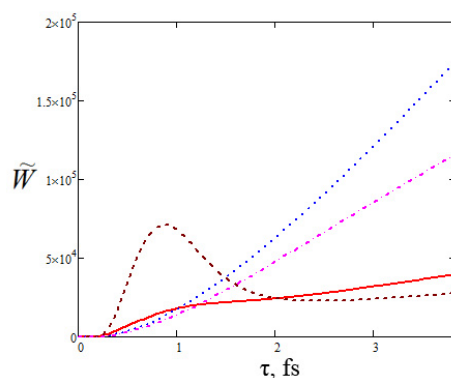


Рис. 1. Зависимость нормированной вероятности фотопоглощения УКИ на металлическом кластере Na_8 от длительности импульса при различных частотах излучения: пунктирная кривая – $\omega = 1.63$ эВ, сплошная кривая – $\omega = 3.26$ эВ, точечная кривая – $\omega = \omega_p = 2.53$ эВ, штрихпунктирная кривая – $\omega = 2.68$ эВ. Значения по оси ординат для точечной и штрих-пунктирной кривых уменьшены в 5 раз

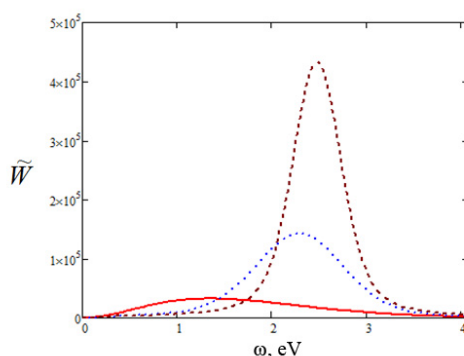


Рис. 2. Спектральная зависимость нормированной вероятности фотопоглощения УКИ на металлическом кластере Na_8 при различных длительностях УКИ: сплошная кривая – $\tau = 0.48$ фс, точечная кривая – $\tau = 1.2$ фс, пунктирная кривая – $\tau = 2.4$ фс

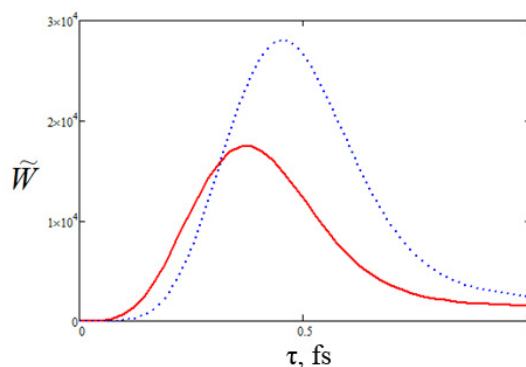


Рис. 3. Зависимость нормированной полной вероятности фотопоглощения УКИ на металлическом кластере Na_8 от длительности импульса: сплошная кривая – синус-вейвлет, точечная кривая – косинус-вейвлет

На рис. 2 представлена спектральная зависимость нормированной вероятности фотопоглощения УКИ скорректированной гауссовской формы при различных длительностях импульса τ . Зависимости имеют вид кривой с выраженным максимумом, амплитудное значение которого уменьшается при уменьшении τ , причем пик смещается в низкочастотную область.

На рис. 3 приведены зависимости нормированной вероятности фотопоглощения (12) УКИ от длительности импульса для случая синус- и косинус-вейвлетов без несущей частоты (10–11). Данные зависимости представляют собой кривые с максимумом. Кривая для косинус-вейвлета имеет большее амплитудное значение в пике, чем в случае синус-вейвлета. Пик кривой косинус-вейвлета смещен в область больших длительностей импульса τ .

Как видно из рис. 3, для вейвлет-импульсов с ростом τ зависимость нормированной вероятности фотопоглощения стремится к нулю. Это объясняется тем, что с ростом τ центральная частота фурье-образа вейвлет-импульса смещается в область более низких значений, что приводит к уменьшению перекрытия спектров вейвлет-импульса (10–11) и сечения фотопоглощения (7). В результате значение интеграла (8), определяющее вероятность поглощения УКИ на кластере в области плазмонного резонанса, уменьшается.

Литература

1. *Astapenko V.A.* Interaction of ultrafast electromagnetic pulses with matter. Springer Briefs in Physics. Heidelberg, New York, Dordrecht, London, 2013.
2. *de Heer W.A.* The physics of simple metal clusters: experimental aspects and simple models // *Rev. Mod. Phys.* 1993. V. 65. P. 611.
3. *Brack M.* The physics of simple metal clusters: self-consistent jellium model and semiclassical approaches // *Rev. Mod. Phys.* 1993. V. 65. P. 677.
4. *Gets A.V., Krainov V.P.* The ionization potentials of atomic ions in laser-irradiated Ar, Kr and Xe clusters // *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics.* 2006. V. 39. P. 1787–1785.
5. *Astapenko V.A., Svita S.Yu.* Absorption of ultrashort electromagnetic pulses by metal nanospheres in a dielectric medium // *Journal of Modern Optics.* 2015. V. 62(3).
6. *Astapenko V.A.* Simple formula for photoprocesses in ultrashort electromagnetic field // *Physics Letters A.* 2010. V. 374. P. 1585–1590.
7. *Korol A.V., Solov'yov A.V.* Polarization Bremsstrahlung. Springer Verlag, Heidelberg, New York, Dordrecht, London, 2014, Chapter 7. P. 216
8. *Kreibig U., Vollmer M.* Optical Properties of Metal Clusters. Springer Verlag, Berlin, Heidelberg, 1995.
9. *Rosmej F.B., Astapenko V.A., Lisitsa V.S.* Effects of ultrashort laser-pulse durations on Fano resonances in atomic spectra // *Phys. Rev. A.* 2014. V. 90. 043421.
10. *Lin Q., Zheng J., Becker W.* Subcycle pulsed focused vector beams // *Physical Review Letters.* 2006. V. 97. 253902-1–253902-4.
11. *Yannouleas C., Broglia R.A.* Collective and single-particle aspects in the optical response of metal microclusters // *Phys. Rev. A.* 1991. V. 44. P. 5793–5802.

References

1. *Astapenko V.A.* Interaction of ultrafast electromagnetic pulses with matter. Springer Briefs in Physics. Heidelberg, New York, Dordrecht, London, 2013.
2. *de Heer W.A.* The physics of simple metal clusters: experimental aspects and simple models. *Rev. Mod. Phys.* 1993. V. 65. P. 611.
3. *Brack M.* The physics of simple metal clusters: self-consistent jellium model and semiclassical approaches. *Rev. Mod. Phys.* 1993. V. 65. P. 677.
4. *Gets A.V., Krainov V.P.* The ionization potentials of atomic ions in laser-irradiated Ar, Kr and Xe clusters. *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics.* 2006. V. 39. P. 1787–1785.

5. *Astapenko V.A., Svita S.Yu.* Absorption of ultrashort electromagnetic pulses by metal nanospheres in a dielectric medium. *Journal of Modern Optics*. 2015. V. 62(3).
6. *Astapenko V.A.* Simple formula for photoprocesses in ultrashort electromagnetic field. *Physics Letters A*. 2010. V. 374. P. 1585–1590.
7. *Korol A.V., Solov'yov A.V.* Polarization Bremsstrahlung. Springer Verlag, Heidelberg, New York, Dordrecht, London, 2014, Chapter 7. P. 216
8. *Kreibig U., Vollmer M.* Optical Properties of Metal Clusters. Springer Verlag, Berlin, Heidelberg, 1995.
9. *Rosmej F.B., Astapenko V.A., Lisitsa V.S.* Effects of ultrashort laser-pulse durations on Fano resonances in atomic spectra. *Phys. Rev. A*. 2014. V. 90. 043421.
10. *Lin Q., Zheng J., Becker W.* Subcycle pulsed focused vector beams. *Physical Review Letters*. 2006. V. 97. 253902-1–253902-4.
11. *Yannouleas C., Broglia R.A.* Collective and single-particle aspects in the optical response of metal microclusters. *Phys. Rev. A*. 1991. V. 44. P. 5793–5802.

Поступила в редакцию 22.04.2016