

РАССЕЯНИЕ УЛЬТРАКОРОТКИХ ЭЛЕКТРОМАГНИТНЫХ ИМПУЛЬСОВ НА МЕТАЛЛИЧЕСКИХ КЛАСТЕРАХ

В. А. Астапенко , С. В. Сахно*

*Московский физико-технический институт (государственный университет)
141700, Долгопрудный, Московская обл., Россия*

Поступила в редакцию 11 мая 2016 г.

Рассчитана и проанализирована вероятность рассеяния ультракороткого импульса (УКИ) на металлических кластерах малого размера в области плазмонного резонанса за все время действия электромагнитного поля. Основное внимание уделено зависимости вероятности рассеяния от длительности импульса для различных отстроек его несущей частоты от резонансной частоты плазмона. Выявлены особенности рассеяния УКИ для плазмонных резонансов с различной добротностью.

DOI: 10.7868/S0044451016120063

1. ВВЕДЕНИЕ

Развитие техники генерации ультракоротких электромагнитных импульсов (УКИ) делает актуальным исследование особенностей их взаимодействия с различными мишенями [1]. Настоящая статья посвящена теоретическому исследованию рассеяния УКИ на металлических кластерах (МК), состоящих из небольшого числа атомов ($N \approx 10$). Особенностью МК является наличие обобществленных валентных электронов [2], которые при воздействии на них электромагнитного поля способны совершать коллективные колебания, приводящие к возникновению поверхностного плазмона [3], поглощению и рассеянию падающего излучения в спектральной области плазмонного резонанса. Характерная энергия поверхностного плазмона в рассматриваемом случае составляет несколько электронвольт. Отметим, что в кластерах, состоящих из атомов благородных газов (Kr, Xe), имеют место также коллективные возбуждения электронов d -оболочек, но они лежат в существенно более высокочастотном диапазоне. Так, в ксеноне коллективное движение электронов $4d$ -оболочки приводит к образованию плазмона с энергией около 100 эВ [4].

Переизлучение УКИ многоатомными системами рассматривалось в работах [5–7] методом внезапных

возмущений, который предполагает, что длительность УКИ много меньше всех характерных времен мишени [8]. Настоящая статья имеет целью проанализировать рассеяние УКИ на МК в области плазмонного резонанса, т. е. в случае, когда метод внезапных возмущений заведомо неприменим. Основное внимание в работе уделено зависимости вероятности рассеяния от длительности импульса для различных несущих частот. Отметим, что рассеяние УКИ на изолированном атоме теоретически исследовалось в работе [9], в которой, однако, данная зависимость не рассчитывалась. Рассеяние УКИ на металлических наносферах с учетом плазмонных интерференционных эффектов анализировалось в статье [10] с использованием теории Ми, которая неприменима для МК субнанометрового радиуса, которые рассматриваются в настоящей работе.

2. МЕТОД РАСЧЕТА И ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ

Вероятность рассеяния УКИ на МК в первом порядке теории возмущений по взаимодействию с электромагнитным полем дается следующим выражением [11]:

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

где c — скорость света, ω' — текущая частота, $\sigma_{sc}(\omega')$ — сечение рассеяния излучения на кластере, $E(\omega', \tau)$ — фурье-образ напряженности электричес-

* E-mail: astval@mail.ru

кого поля в электромагнитном импульсе, τ — длительность импульса. Очевидно, что выражение (1) имеет смысл в рамках применимости теории возмущений, т. е. при $W < 1$.

Сечение рассеяния излучения выражается через динамическую поляризуемость мишени $\alpha(\omega)$ согласно формуле

$$\sigma_{sc}(\omega) = \frac{8\pi\omega^4}{3c^4} |\alpha(\omega)|^2. \quad (2)$$

Динамическая поляризуемость металлического кластера в резонансном плазмонном приближении равна [12, 13]

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

где ω_p — резонансная частота поверхностного плазмона, Γ — ширина резонансной кривой, R — радиус МК [2]:

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

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:

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

Заметим, что для рассматриваемых здесь МК с малым числом атомов заведомо выполняется условие дипольного приближения: $\lambda_p \gg R$, где $\lambda_p = 2\pi c/\omega_p$.

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 рассеяния излучения на кластере в области плазмонного резонанса (в обычных единицах):

$$\sigma_{sc}(\omega) = \frac{8\pi R^6 \omega^4}{3c^4} \frac{\omega_p^4}{(\omega_p^2 - \omega^2)^2 + \omega^2 \Gamma^2}. \quad (7)$$

Подставляя (7) в (1), получаем формулу для вероятности рассеяния УКИ на металлическом кластере за все время действия импульса:

$$W(\tau) = \frac{2}{3\pi} \frac{R^6 \omega_p^4}{\hbar c^3} \int_0^\infty \frac{|E(\omega', \tau)|^2 \omega'^3}{(\omega_p^2 - \omega'^2)^2 + \omega'^2 \Gamma^2} d\omega'. \quad (8)$$

Полученное выражение можно переписать, введя безразмерные переменные:

$$\begin{aligned} w &= \omega'/\Gamma, & q &= \omega_p/\Gamma, & \tilde{\tau} &= \tau\Gamma, \\ \tilde{\omega} &= \omega/\Gamma, & \tilde{E} &= E/E_0, \end{aligned} \quad (9)$$

где ω — несущая частота и E_0 — амплитуда напряженности электрического поля в импульсе. Параметр q имеет смысл добротности плазмонного резонанса. С учетом (9) формула (8) переписывается в виде

$$W(\tilde{\tau}, q) = \frac{2}{3\pi} \frac{R^6 \omega_p^2 E_0^2}{\hbar c^3} q^2 \int_0^\infty \frac{|\tilde{E}(w, \tilde{\tau})|^2 w^3}{(q^2 - w^2)^2 + w^2} dw. \quad (10)$$

Рассмотрим рассеяние на МК скорректированного гауссова импульса (СГИ). Нормированный (на E_0^2) квадрат модуля фурье-образа СГИ в безразмерных переменных имеет вид [14, 15]

$$|\tilde{E}(w, \tilde{\tau}, \tilde{\omega})|^2 \approx \frac{\pi}{2} \tilde{\tau}^2 \left[\frac{w^2 \tilde{\tau}^2}{1 + \tilde{\omega}^2 \tilde{\tau}^2} \right]^2 \times \exp(-(\tilde{\omega} - w)^2 \tilde{\tau}^2). \quad (11)$$

Отметим, что, как видно из равенства (11), СГИ не содержит постоянной составляющей электрического поля в отличие от обычного гауссова импульса. Подставляя (11) в (10), находим

$$W(\tilde{\tau}, q) = \frac{2}{3\pi} \frac{R^6 \omega_p^2 E_0^2}{\hbar c^3} q^2 S(\tilde{\tau}, \tilde{\omega}, q), \quad (12)$$

где

$$\begin{aligned} S(\tilde{\tau}, \tilde{\omega}, q) &= \frac{\tilde{\tau}^6}{(1 + \tilde{\omega}^2 \tilde{\tau}^2)^2} \times \\ &\times \int_0^\infty \frac{\exp(-(\tilde{\omega} - w)^2 \tilde{\tau}^2) w^7}{(q^2 - w^2)^2 + w^2} dw \end{aligned} \quad (13)$$

— безразмерная функция, которая определяет зависимость вероятности рассеяния УКИ от параметров импульса (длительности τ и несущей частоты ω) для различных значений добротности плазмонного резонанса q .

В пределе длинных импульсов ($\tilde{\omega}\tilde{\tau} \gg 1$) из (13) получаем

$$S_{long}(\tilde{\tau}, \tilde{\omega}, q) = \frac{\sqrt{\pi} \tilde{\omega}^3 \tilde{\tau}}{(q^2 - \tilde{\omega}^2)^2 + \tilde{\omega}^2}, \quad (14)$$

т. е. вероятность рассеяния возрастает линейно с ростом длительности импульса. Подставляя равенства (4) и (6) в (12), находим

$$W(\tilde{\tau}, q) = \frac{2}{3\pi} \frac{r_{WS}^3 N^2}{\chi} \frac{E_0^2}{\hbar c^3} q^2 S(\tilde{\tau}, \tilde{\omega}, q). \quad (15)$$

Таким образом, в рассматриваемом здесь дипольном приближении вероятность рассеяния УКИ на МК пропорциональна квадрату числа атомов в кластере, что связано с конструктивной интерференцией вкладов в рассеяние от всех валентных электронов кластера.

В случае точного резонанса $\tilde{\omega} = q$, как показывает расчет, зависимость $W(\tilde{\tau})$ представляет собой монотонно возрастающую функцию, нелинейную в пределе коротких импульсов, $\tilde{\tau} < 1/q$, и переходящую в линейную функцию при $\tilde{\tau} > \tilde{\tau}^* \approx 1$, т. е. для длительностей $\tau > 1/\Gamma$.

С целью анализа нерезонансного случая $\tilde{\omega} \neq q$ введем относительную отстройку несущей частоты УКИ от частоты плазмонного резонанса: $\delta = (\omega - \omega_p)/\omega_p$.

Рассмотрим для примера рассеяние СГИ на кластере Na_8 , который имеет один плазмонный резонанс с добротностью $q \approx 10$ и плазмонной частотой $\omega_p \approx 2.48$ эВ. Радиус данного кластера равен 0.4 нм.

Результаты расчетов функции (13) для относительно малых значений параметра δ представлены на рис. 1. Видно, что с увеличением спектральной отстройки вероятность рассеяния как функция длительности СГИ становится более нелинейной для $\tau > 1$ фс. Кроме того, функция $S(\tau)$ зависит от знака отстройки δ . Это обстоятельство связано с видом сечения рассеяния (7), которое в высокочастотном крыле плазмонного резонанса уменьшается медленнее, чем в низкочастотном крыле.

Для больших частотных отстроек, как видно из рис. 2, нелинейность функции $S(\tau)$ увеличивается, а зависимость от знака δ становится более сильной. Так, для $\delta = -10\%$, -20% на соответствующих кривых возникают максимумы, в то время как при $\delta > 0$ вероятность рассеяния монотонно возрастает с ростом длительности СГИ для заданного значения добротности $q = 10$.

Численный анализ показывает, что с ростом параметра q максимум зависимости вероятности рассеяния от длительности УКИ становится более вы-

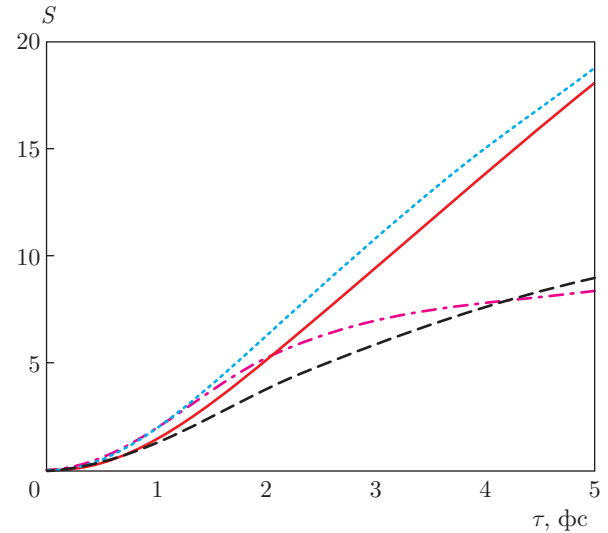


Рис. 1. Рассеяние СГИ на кластере Na_8 при $\delta = 5\%$ (сплошная кривая), -5% (пунктирная), 10% (штриховая), -10% (штрихпунктирная)

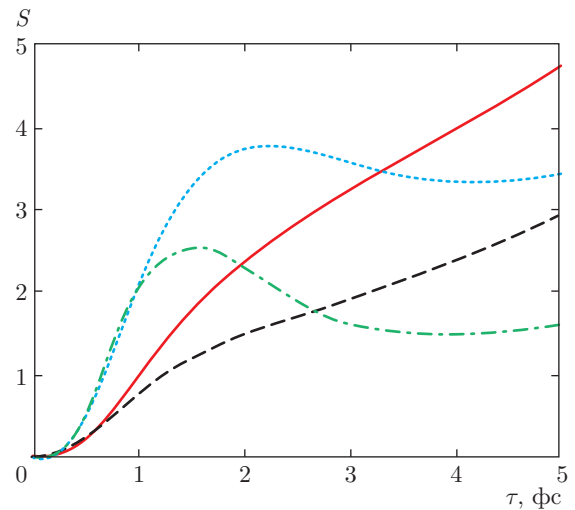


Рис. 2. Рассеяние СГИ на кластере Na_8 при $\delta = 15\%$ (сплошная кривая), -15% (пунктирная), 20% (штриховая), -20% (штрихпунктирная)

раженным и сдвигается в область больших длительностей импульсов. Для положительных отстроек δ зависимость вероятности от длительности СГИ приобретает немонотонный характер только для больших значений добротности: $q > q^*(\delta > 0) \gg 1$. В случае отрицательных отстроек немонотонность зависимости $W(\tau)$ всегда имеет место, если только величина $|\delta|$ достаточно велика.

На рис. 3 представлен нормированный на длительность импульса спектр рассеяния СГИ на кластере Na_8 для различных значений параметра τ . Вид-

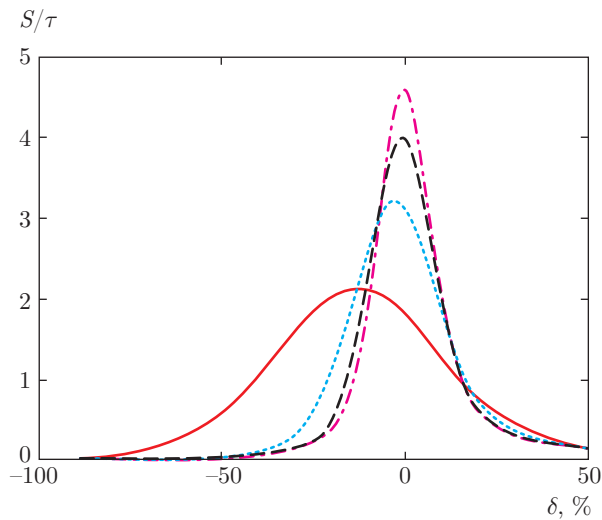


Рис. 3. Нормированный спектр рассеяния СГИ различной длительности на кластере Na_8 для $\tau = 1$ фс (сплошная кривая), 2 фс (пунктирная), 3 фс (штриховая), 4 фс (штрихпунктирная)

но, что с уменьшением длительности СГИ спектр уширяется, а его максимум смещается в область отрицательных отстроек. Это смещение обусловлено «голубым» сдвигом в спектре СГИ, когда частота максимума спектра в пределе малых τ ($\omega\tau < 1$) становится больше несущей частоты ω . С другой стороны, спектр рассеяния длинных СГИ симметричен относительно нулевой отстройки и слабо меняется с ростом τ .

3. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В рамках первого порядка теории возмущений исследована вероятность рассеяния ультракороткого электромагнитного импульса на металлическом кластере субнанометрового радиуса за все время действия электромагнитного поля как функция длительности импульса, $W(\tau)$, для различных значений несущей частоты вблизи плазмонного резонанса. Расчет проведен для кластера Na_8 и электромагнитного импульса скорректированной гауссовой формы.

Показано, что функция $W(\tau)$ является, вообще говоря, нелинейной и существенно зависит от добротности плазмонного резонанса q , а также относительной отстройки δ несущей частоты УКИ от частоты поверхностного плазмона ω_p . В случае малых положительных значений параметра δ ($\delta < 5\%$) нелинейность функции $W(\tau)$ для $q \approx 10$ весьма мала и проявляется только в пределе малых длительнос-

тей $\tau < 1/\omega$ (т.е. в рассматриваемом случае в аттосекундном диапазоне). С ростом модуля частотной отстройки ($|\delta| \approx 15\text{--}20\%$) нелинейность вероятности рассеяния как функции длительности импульса становится более заметной, в особенности для отрицательных значений δ , когда на кривой $W(\tau)$ появляются максимумы. Данные максимумы лежат в фемтосекундном диапазоне, сдвигаясь в область больших значений длительности с увеличением (по модулю) отрицательной отстройки.

Показано также, что с уменьшением длительности спектр вероятности рассеяния СГИ смещается в область меньших значений несущей частоты импульса и заметно уширяется. Для достаточно больших длительностей ($\tau \geq 2$ фс в случае кластера Na_8) положение спектрального максимума вероятности рассеяния и его ширина практически не изменяются с увеличением τ .

Авторы благодарны В. С. Лисице за плодотворное обсуждение особенностей рассеяния УКИ на системах с плазмонным резонансом.

Работа выполнена при финансовой поддержке Министерства образования и науки РФ в рамках Госзаказа (НИР № 1940).

ЛИТЕРАТУРА

1. V. Astapenko, *Interaction of Ultrafast Electromagnetic Pulses with Matter*, Springer Briefs in Physics, Heidelberg, New York, Dordrecht, London (2013).
2. W. A. de Heer, *Rev. Mod. Phys.* **65**, 611 (1993).
3. M. Brack, *Rev. Mod. Phys.* **65**, 677 (1993).
4. М. Я. Амусья, *Атомный фотоэффект*, Наука, Москва (1987).
5. М. К. Есеев, В. И. Матвеев, В. М. Юлкова, *ЖТФ* **82**, 130 (2012).
6. В. И. Матвеев, Д. У. Матрасулов, *Письма в ЖЭТФ* **96**, 700 (2012).
7. Д. Н. Макаров, В. И. Матвеев, *ЖЭТФ* **144**, 905 (2013).
8. А. М. Дыхне, Г. Л. Юдин, *УФН* **125**, 377 (1978).
9. В. А. Астапенко, *ЖЭТФ* **139**, 228 (2011).
10. В. А. Астапенко, С. Ю. Свита, *ЖЭТФ* **148**, 444 (2015).
11. V. A. Astapenko, *Phys. Lett. A* **374**, 1585 (2010).

12. A. V. Korol and A. V. Solov'yov, *Polarization Bremsstrahlung*, Springer-Verlag, Heidelberg, New York, Dordrecht, London (2014), Ch. 7, p. 216.
13. U. Kreibig and M. Vollmer, *Optical Properties of Metal Clusters*, Springer-Verlag, Berlin, Heidelberg (1995).
14. F. B. Rosmej, V. A. Astapenko, and V. S. Lisitsa, *Phys. Rev. A* **90**, 043421 (2014).
15. Qiang Lin, Jian Zheng, and Wilhelm Becker, *Phys. Rev. Lett.* **97**, 253902 (2006).