

01

Рассеяние электромагнитного излучения на металлической наночастице

© И.А. Кузнецова, М.Е. Лебедев, А.А. Юшканов

Ярославский государственный университет им. П.Г. Демидова
Московский государственный областной университет
E-mail: kuz@uniyar.ac.ru mihaleb@ya.ru yushkanov@inbox.ru

Поступило в Редакцию 20 сентября 2013 г.

В рамках стандартной кинетической теории в дипольном приближении вычислено сечение рассеяния электромагнитного излучения малой металлической частицы сферической формы. Расчет выполнен для сравнительно мелких частиц (~ 10 nm), что позволяет пренебречь скин-эффектом. Рассмотрен диффузно-зеркальный механизм отражения электронов проводимости от поверхности частицы. Показано, что при определенных углах рассеяния доминирующим становится магнитное дипольное рассеяние. Исследовано влияние кинетических эффектов на дифференциальное сечение рассеяния.

Рассматривается малая сферическая частица немагнитного металла, помещенная в поле плоской линейно поляризованной электромагнитной волны частотой ω . Если радиус частицы a сравним с длиной свободного пробега электронов λ или меньше ее, взаимодействие электронов проводимости с поверхностью частицы оказывает значительное влияние на ее оптические характеристики: сечения поглощения и рассеяния обнаруживают нетривиальную зависимость от отношения a/λ . В этом случае теория Ми взаимодействия электромагнитного излучения со сферической частицей оказывается неприменимой, и задачу необходимо решать в рамках кинетического подхода [1–4].

При условии $a \ll \Lambda$ ($\Lambda \sim c/\omega$ — длина волны) электромагнитное поле падающей волны можно считать однородным. Частица в однородном поле приобретает электрический и магнитный моменты \mathbf{P} и \mathbf{M} , а рассеянная волна — результат излучения этими переменными моментами.

Диапазон рассматриваемых частот определяется условием: $\omega \ll \omega_p$, где ω_p — частота плазменного резонанса, это соответствует ограничению сверху частотами ближнего ИК-диапазона. Оценки, выпол-

ленные в работе [1], показывают, что для частиц размером 1–10 nm вследствие экранировки электрического поля в частице в рассматриваемом диапазоне частот вклад токов дипольной электрической поляризации в поглощение мал по сравнению с вкладом вихревых токов, индуцируемых магнитным полем волны. В то же время в полном сечении рассеяния доминирует электрическое рассеяние [5]. Однако, как показано в данной работе, для дифференциального сечения рассеяния при определенных углах рассеяния доминирующим является магнитное дипольное рассеяние.

Однородное периодическое во времени магнитное поле $\mathbf{H} = \mathbf{H}_0 \exp(-i\omega t)$ порождает вихревое электрическое поле \mathbf{E} , которое находится из уравнения индукции Максвелла. Под действием вихревого поля внутри частицы возникает вихревой ток \mathbf{j} :

$$\mathbf{j} = en\langle \mathbf{v} \rangle = e \int \mathbf{v} f(\mathbf{r}, \mathbf{v}) \frac{2d^3(mv)}{h^3}, \quad (1)$$

где e , m , \mathbf{v} — соответственно заряд, эффективная масса и скорость электрона, n — концентрация электронов, $f(\mathbf{r}, \mathbf{v})$ — неравновесная функция распределения электронов, \mathbf{r} — радиус-вектор (начало координат — в центре частицы), h — постоянная Планка.

Магнитный момент, созданный током (1), определяется выражением [5]

$$\mathbf{M} = \frac{1}{2c} \int [\mathbf{r} \times \mathbf{j}] dV. \quad (2)$$

Электрический момент в первом приближении по $1/\varepsilon(\omega)$, где $\varepsilon(\omega)$ — комплексная диэлектрическая проницаемость металла на частоте ω , можно вычислить как момент проводящего ($\varepsilon \rightarrow \text{inf}$) шара радиусом a в однородном электрическом поле \mathbf{E}

$$\mathbf{P} = a^3 \mathbf{E}. \quad (3)$$

На больших расстояниях от частицы ($r \gg \Lambda$) поле рассеянной волны имеет вид [5]

$$\mathbf{H}' = \frac{\omega^2}{c^2 r} \{ [\mathbf{n} \times \mathbf{P}] + [\mathbf{n} \times [\mathbf{M} \times \mathbf{n}]] \}, \quad \mathbf{E}' = [\mathbf{H}' \times \mathbf{n}], \quad (4)$$

где единичный вектор \mathbf{n} указывает направление рассеяния, а значения \mathbf{P} и \mathbf{M} взяты в момент времени $(t - r/c)$; поле рассеянной волны

обозначено буквами со штрихами, поле падающей волны — буквами без штрихов. Дифференциальное сечение рассеяния получим, разделив среднюю интенсивность излучения $(c/8\pi)|\mathbf{H}'|^2 r^2 d\omega$, рассеянного в телесный угол $d\omega$, на плотность потока энергии в падающей волне $c\mathbf{H}^2/8\pi$:

$$d\sigma = \frac{|\mathbf{H}'|^2}{H^2} r^2 d\omega. \quad (5)$$

После интегрирования (5) по всем углам получим полное сечение рассеяния σ .

Таким образом, задача о вычислении сечения рассеяния (5) сводится к кинетическому расчету магнитного момента (2), созданного вихревым током (1).

В приближении времени релаксации τ и в линейном (по полю \mathbf{E} и по малым отклонениям от состояния равновесия f_1) приближении уравнение Больцмана имеет вид

$$-i\omega f_1 + \mathbf{v} \frac{\partial f_1}{\partial \mathbf{r}} + e\mathbf{v}\mathbf{E} \frac{\partial f_0}{\partial \varepsilon} = -\frac{f_1}{\tau}, \quad (6)$$

$$f(\mathbf{r}, \mathbf{v}) = f_0(\varepsilon) + f_1(\mathbf{r}, \mathbf{v}),$$

здесь $f_0(\varepsilon)$ — равновесная функция Ферми–Дирака, ε — кинетическая энергия электрона (далее предполагается $\varepsilon = mv^2/2$).

В качестве граничного условия для $f_1(\mathbf{r}, \mathbf{v})$ на поверхности частицы ($|\mathbf{r}| = a$) принимаем условие диффузно-зеркального отражения электронов от поверхности [3]

$$f_1(\mathbf{r}, \mathbf{v}) = qf_1(\mathbf{r}, \mathbf{v}') = \begin{cases} |\mathbf{r}| = a, \\ \mathbf{r} \times \mathbf{v} < 0. \end{cases} \quad (7)$$

Здесь $\mathbf{v}' = \mathbf{v} - 2\mathbf{r}(\mathbf{r} \times \mathbf{v})/a^2$ — вектор скорости, который при зеркальном отражении от поверхности частицы в точке \mathbf{r} ($|\mathbf{r}| = a$) переходит в вектор \mathbf{v} ; q — коэффициент зеркальности (вероятность зеркального отражения: $0 \leq q \leq 1$) [3].

Уравнение Больцмана (6) с учетом (7) решается методом характеристик [6]:

$$f_1(t') = \frac{e(\mathbf{E} \times \mathbf{v})}{v} \left(\frac{\partial f_0}{\partial \varepsilon} \right) \left[\frac{(1-q)\exp(-vt')}{1-q\exp(-vT)} - 1 \right], \quad (8)$$

$$v = \frac{1}{\tau} - i\omega, \quad T = 2\sqrt{(\mathbf{r} \times \mathbf{v})^2 + (a^2 - r^2)v^2}/v^2,$$

$$t' = \left((\mathbf{r} \times \mathbf{v}) + \sqrt{(\mathbf{r} \times \mathbf{v})^2 + (a^2 - r^2)v^2} \right) / v^2,$$

здесь T — время пролета электрона со скоростью \mathbf{v} между двумя последовательными столкновениями с поверхностью, t' — время движения от границы частицы до точки \mathbf{r} .

Найденная функция распределения (8) позволяет рассчитать ток, который в сферической системе координат имеет лишь φ -компоненту:

$$j_\varphi = E_\varphi \left(\frac{ne^2 a}{mv_F} \right) \frac{3}{4z_0} \left[\frac{4}{3} + \int_{-1}^1 \frac{(q-1) \exp\{-z_0(\xi\mu + \eta_0/2)\}}{1 - q \exp(-z_0\eta_0)} (1 - \mu^2) d\mu \right]. \quad (9)$$

Здесь введены безразмерные переменные

$$z_0 = av/v_F = x_0 - iy_0, \quad x_0 = a/(v_F\tau), \quad y_0 = a\omega/v_F,$$

$$\xi = r/a, \quad \mu = (\mathbf{v} \times \mathbf{r})/(vr) = \cos \alpha, \quad \eta_0 = 2\sqrt{\xi^2\mu^2 + 1 - \xi^2},$$

где v_F — скорость Ферми, и учтено, что

$$vt' = z_0(\xi\mu + \eta_0/2), \quad vT = z_0\eta_0,$$

$$n = 2(m/h)^3 \int f_0 d^3v = 2(m/h)^3 4\pi v_F^3/a^3.$$

Магнитный момент (2) с учетом (9) представим в виде

$$\mathbf{M} = i \frac{3\pi^2}{16} \frac{ne^2 y_0}{c^2 m} a^5 I(q, x_0, y_0) \mathbf{H}, \quad (10)$$

$$I(q, x_0, y_0) = \frac{1}{z_0} \left[\frac{4}{15} + \int_0^1 \int_{-1}^1 \xi^4 (1 - \mu^2) \frac{(q-1) \exp\{-z_0(\xi\mu + \eta_0/2)\}}{1 - q \exp(-z_0\eta_0)} d\xi d\mu \right].$$

Интеграл в $I(q, x_0, y_0)$ с помощью замены переменных $\rho = \sqrt{\xi^2\mu^2 + 1 - \xi^2}$, $u = \xi\mu$ сводится к однократному:

$$I(q, x_0, y_0) = \frac{4}{15z_0} + \int_0^1 \rho(1 - \rho^2) \frac{(q-1)(1 - \exp(-2z_0\rho))}{z_0^2(1 - q \exp(-2z_0\rho))} d\rho. \quad (11)$$

Магнитный момент (10) пропорционален напряженности магнитного поля \mathbf{H} : $\mathbf{M} = -a^3\gamma\mathbf{H}$ [5], при этом безразмерная величина γ имеет вид

$$\gamma(q, x_0, y_0, d) = \frac{-3i\pi y_0 d^2}{64} I(q, x_0, y_0), \quad (12)$$

$$d = \frac{a}{\delta_{inf}} = \frac{a\omega_p}{c} = \frac{a(4\pi e^2 n/m)^{1/2}}{c}.$$

Здесь безразмерный параметр d введен как величина, обратная характерной глубине скин-слоя в пределе высоких частот $\delta_{inf} = c/\omega_p \sim 30$ nm.

Учитывая взаимную перпендикулярность векторов \mathbf{E} и \mathbf{H} , после соответствующих вычислений с учетом (3)–(5), (10)–(12) для дифференциального сечения рассеяния получим

$$d\sigma(q, x_0, y_0, \psi, \phi) = \frac{a^6 \omega^4}{c^4} K(q, x_0, y_0, \psi, \phi) d\omega, \quad (13)$$

$$K(q, x_0, y_0, \psi, \phi) = K_E(\psi, \phi) + K_M(q, x_0, y_0, \psi, \phi) + K_I(q, x_0, y_0, \psi, \phi), \quad (14)$$

$$K_E = \sin^2 \phi + \cos^2 \psi \cos^2 \phi, \quad K_M = |\gamma|^2 \cos^2 \phi + \cos^2 \psi |\gamma|^2 \sin^2 \phi,$$

$$K_I = -(\gamma + \gamma^*) \cos \psi.$$

Здесь ψ и ϕ — соответственно полярный и азимутальный углы системы координат, центр которой — в центре частицы, а полярная ось направлена вдоль направления распространения падающей волны. Коэффициент $K(q, x_0, y_0, \psi, \phi)$ [14], назовем его безразмерным дифференциальным сечением рассеяния, определяет зависимость сечения рассеяния от коэффициента зеркальности q , величин x_0, y_0 и от углов ψ и ϕ . K_E и K_M — составляющие дифференциального сечения рассеяния, обусловленные электрическим и магнитным моментами соответственно, K_I — перекрестная компонента, возникающая вследствие наложения рассеянных волн. Сумму $K_M + K_I$ обозначим K_{MI} , именно эти составляющие K_M и K_I содержат величину γ (12), учитывающую вклад кинетических эффектов в дифференциальное сечение рассеяния (13), обусловленный диффузно-зеркальным отражением электронов от сферической поверхности частицы. Этот вклад описывается вторым слагаемым (интегралом) в выражении (11), входящим в γ (12). Первое слагаемое в (11) соответствует классическому результату теории Ми:

как видно из формулы (11), независимо от характера отражения электронов на границе с ростом размера частицы в предельном случае $x_0 = a/\lambda \gg 1$ относительный вклад поверхностных эффектов по сравнению с объемными столкновениями убывает как x_0^{-1} ($|z_0| \sim x_0^{-1}$). Следовательно, для величины γ (12) имеет место макроскопическая асимптотика

$$\gamma \approx \frac{-3i\pi y_0 d^2}{64} \frac{4}{15(x_0 - iy_0)}. \quad (15)$$

Отметим, что выражение (15) согласуется с результатом [5], полученным в рамках теории Ми ($\gamma \approx -(ka)^2/30$, при $|ka| \ll 1$, где $k = \omega\sqrt{\epsilon}/c$):

$$\gamma \approx \frac{-3i\pi y_0 d^2}{64} \frac{4}{15(x_0 - iy_0)} = -\frac{3\pi}{8} \frac{\epsilon\omega^2 a^2}{30c^2} = -\frac{3\pi}{8} \frac{(ka)^2}{30}. \quad (16)$$

Здесь учтено, что для рассматриваемого диапазона частот $\omega \ll \omega_p$ диэлектрическая проницаемость $\epsilon = \epsilon(\omega) \approx -i4\pi\Sigma(\omega)/\omega$, где $\Sigma(\omega) = 1/(1 - i\omega\tau)$ — проводимость Друде, $\Sigma_0 = ne^2\tau/m$ — статическая проводимость. Таким образом, в случае малых длин свободного пробега ($x_0 = a/\lambda \gg 1$) дифференциальное сечение рассеяния (13) с учетом (15) переходит в классический результат [5]. Однако уже при $\lambda \sim a$ ($x_0 \sim 1$), и тем более в обратном предельном случае больших длин свободного пробега ($x_0 = a/\lambda \ll 1$), вклад поверхностных столкновений в дифференциальное сечение рассеяния (13) при определенных углах рассеяния становится весьма существенным (рис. 1–3).

Отметим, что в пределе чисто зеркального отражения при $q \rightarrow 1$ величина γ (12) также переходит в выражение (16), а дифференциальное сечение рассеяния [3] соответственно в классический результат [5]. Это связано с тем, что при $q = 1$ граница не оказывает влияния на функцию распределения f_1 , поэтому вихревой ток внутри зеркально отражающей сферы удовлетворяет локальному закону Ома при любом соотношении между радиусом частицы a и длиной свободного пробега электронов λ .

На рис. 1 представлены зависимости $K(q)$ при различных значениях x_0 и y_0 . Из графиков следует, что с уменьшением параметра x_0 безразмерное дифференциальное сечение рассеяния возрастает при любых значениях коэффициента зеркальности q . Отметим, что этот размерный эффект является следствием кинетического расчета и не проявляется в рамках макроскопической теории.

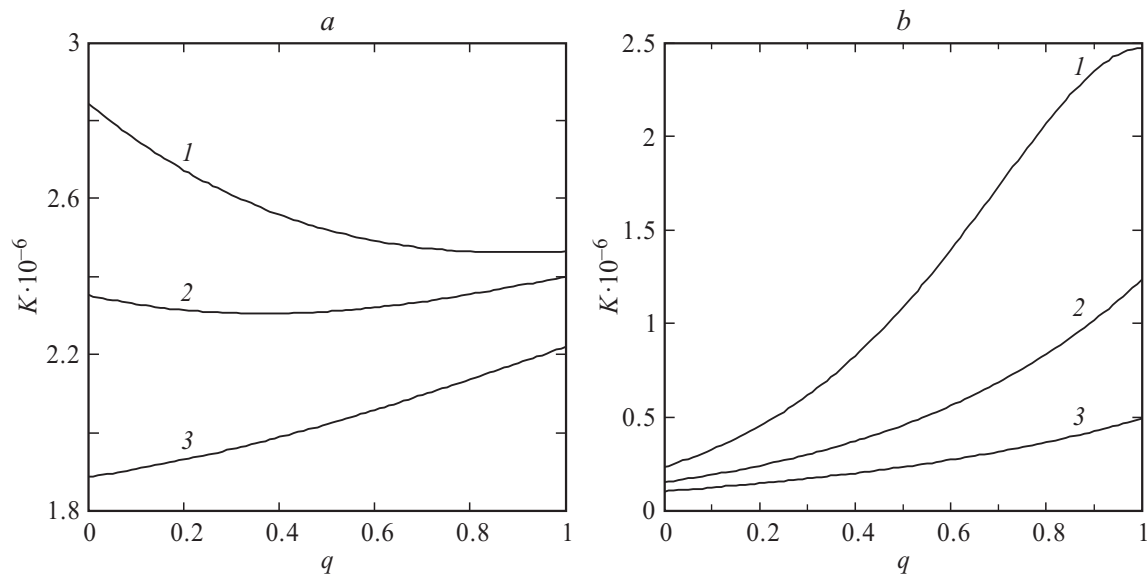


Рис. 1. Зависимость безразмерного дифференциального сечения рассеяния K от коэффициента зеркальности q при $d = 0.2$, $\psi = \pi/2$, $\phi = 0$ для случаев: a — $y_0 = 3$; b — $y_0 = 0.3$. Кривые 1, 2, 3 — $x_0 = 0.1, 0.5, 1$ соответственно.

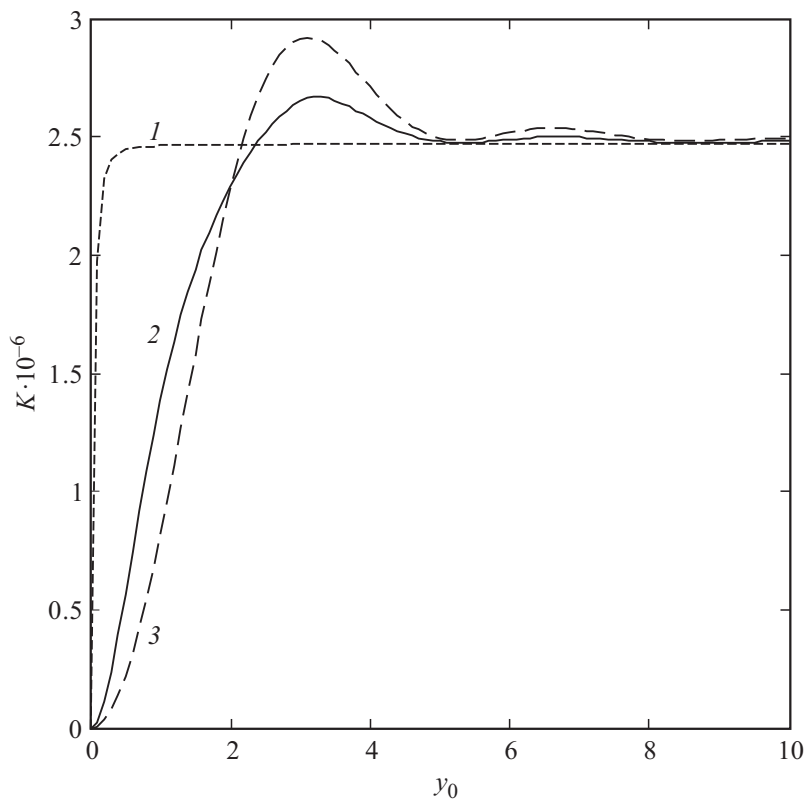


Рис. 2. Зависимость безразмерного дифференциального сечения рассеяния K от безразмерной частоты y_0 при $x_0 = 0.05$, $d = 0.2$, $\psi = \pi/2$, $\phi = 0$. Кривые 1, 2, 3 — $q = 0, 0.3, 1$ соответственно.

На рис. 2 изображены спектральные зависимости дифференциального сечения рассеяния. При $x_0 \ll 1$ (низкие температуры, чистые образцы) в высокочастотной области ($y_0 > 1$) наблюдаются затухающие осцилляции, исчезающие по мере роста q . Выше отмечалось, что при $q = 1$ нелокальные поверхностные эффекты отсутствуют, т.е. кривая (1) ($q = 1$) соответствует классическому результату теории Ми [5].

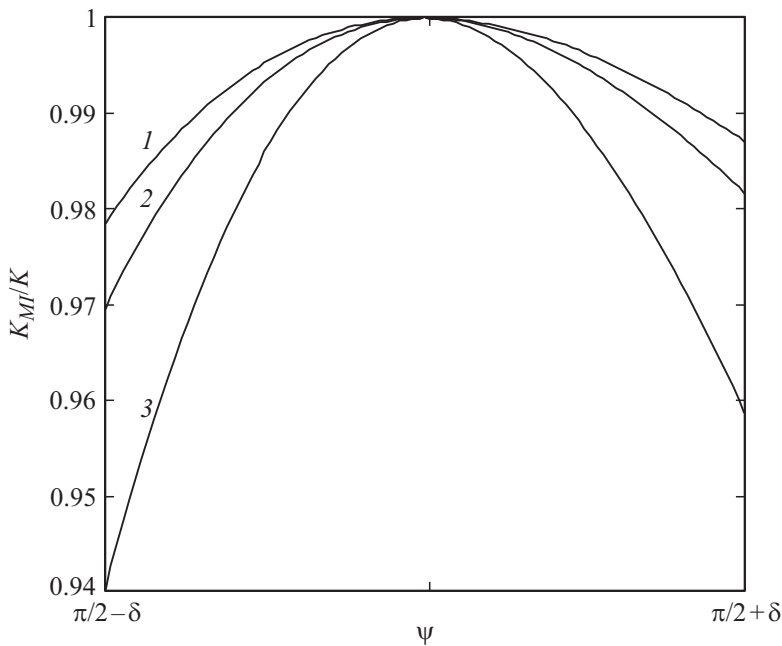


Рис. 3. Зависимость K_{MI}/K от угла ψ в интервале $\pi/2 \pm \delta$ ($\delta = 2 \cdot 10^{-4}$ rad) при $\phi = 0$, $y_0 = 1$, $d = 0.2$, $x_0 = 0.1$. Кривые 1, 2, 3 — $q = 1, 0.5, 0$ соответственно.

На рис. 3 представлены зависимости $K_{MI}/K(\psi)$ при различных значениях q в пределах $\pi/2 \pm \delta$, где δ — малая поправка к углу ψ . Кривая 1 ($q = 1$) также соответствует классическому результату теории Ми [5]. Видно, что при относительно малых значениях x_0 (относительно мелкие частицы или большие λ) в рассматриваемом угловом диапазоне преобладает магнитное дипольное рассеяние. Поскольку форма его спектра оказывается непосредственно связанной с механизмом поверхностного отражения носителей заряда, то экспериментальное исследование сечения рассеяния в этом угловом диапазоне может дать информацию относительно кинетики электронов в металлической частице. На низкочастотное электрическое рассеяние характер взаимодействия электронов с поверхностью частицы практически не влияет.

Список литературы

- [1] *Лесскис А.Г., Пастернак В.Е., Юшканов А.А.* // ЖЭТФ. 1982. Т. 83. В. 1(7). С. 310–317.
- [2] *Totchik P.M., Totchik V.M.* // Phys. Rev. B. 2006. V. 73. P. 155 423.
- [3] *Моисеев И.О., Юшканов А.А., Яламов Ю.И.* // Оптика и спектроскопия. 2008. Т. 105. № 4. С. 667–672.
- [4] *Березкина С.В., Кузнецова И.А., Юшканов А.А.* // ЖТФ. 2004. Т. 74. В. 12. С. 67–71.
- [5] *Ландау Л.Д., Лифшиц Е.М.* Теоретическая физика. Т. 8. Электродинамика сплошных сред. М.: Наука, 1982. 620 с.
- [6] *Курант Р.* Уравнения с частными производными. М.: Мир, 1964. 830 с.