

Теория поглощения двойного ультракороткого лазерного импульса несферическими металлическими частицами малого размера

Н.И. Григорчук

*Институт теоретической физики им. Н.Н. Боголюбова НАН Украины
ул. Метрологическая, 14-б. г. Киев, 03680, Украина*

E-mail: ngrigor@bitp.kiev.ua

П.М. Томчук

Институт физики НАН Украины, пр. Науки, 46, г. Киев, 03680, Украина

E-mail: ptomchuk@iop.kiev.ua

Статья поступила в редакцию 16 января 2008 г., после переработки 12 февраля 2008 г.

Разработана теория, позволяющая для частиц малого размера несферической формы вычислить энергию, поглощаемую ими при облучении двойными ультракороткими лазерными импульсами заданной длительности, в области возбуждения поверхностных плазмонов (Ми-резонансы). Для частиц, имеющих форму сплюснутого или вытянутого сфероида, найдена зависимость этой энергии от величины отклонения формы частицы от сферической, длительности импульса, объема частицы и от поляризации электрического поля лазерного луча относительно оси вращения сфероида. Показано, что в зависимости от времени задержки между двумя импульсами поглощенная частицей энергия может как превышать, так и быть меньше суммарной энергии поглощения двух нескоррелированных импульсов.

Розроблено теорію, що дозволяє для частинок малого розміру несферичної форми обчислити енергію, що поглинається ними при опроміненні подвійними ультракороткими лазерними імпульсами заданої тривалості, в області збудження поверхневих плазмонів (Мі-резонанси). Для частинок, що мають форму сплюсненого або витягнутого сфероїда, знайдено залежність цієї енергії від величини відхилення форми частинки від сферичної, тривалості імпульсу, об'єму частинки та від поляризації електричного поля лазерного променя відносно осі обертання сфероїда. Показано, що залежно від часу затримки між двома імпульсами, енергія, яка поглинена частинкою, може як перевищувати, так і бути менше сумарної енергії поглинання двох нескорельованих імпульсів.

PACS : 78.67.Vf Нанокристаллы и наночастицы;

42.25.Bs Распространение, прохождение и поглощение волн;

78.20.-e Оптические свойства массивных материалов и тонких пленок;

73.63.-b Электронный перенос в наномасштабных материалах и структурах.

Ключевые слова: двойной ультракороткий лазерный импульс, металлическая наночастица, Ми-резонансы, поверхностные плазмоны.

1. Введение

Развитие фемтосекундных (*фс*) лазеров привело к широкому использованию ультракоротких импульсов для исследования различных систем, в том числе и металлических частиц малых размеров. Малые металлические частицы (ММЧ) изучаются главным образом благодаря своим уникальным оптическим свойствам

[1] и широкому применению, начиная от покрытий поверхностей с целью изменения их отражающих характеристик [2] и до оптических приборов [3] и лечения рака [4].

Характер воздействия ультракоротких лазерных импульсов на ММЧ существенно зависит от интенсивности применяемых импульсов. При использовании мощных импульсов с интенсивностью 10^{14} – 10^{21} Вт/см²

электронный газ металлического кластера мгновенно разогревается до огромных температур, от десятков до десятков тысяч эВ (см. обзоры [5–7]). Созданная таким облучением плотная микроплазма становится источником рентгеновского излучения. В результате поглощения интенсивных ультракоротких импульсов происходит «кулоновский взрыв» металлических кластеров, спровоцированный мощной эмиссией горячих электронов и, как следствие, кулоновской зарядкой кластера.

При облучении ММЧ ϕc лазерными импульсами умеренной интенсивности, при которых разрушение частиц еще не происходит, наблюдаются также интересные явления: мгновенно разогретая электронная система начинает релаксировать, отдавая энергию колебаниям решетки кластера. При этом возбуждаются радиальные акустические колебания решетки, модулирующие радиус частицы. В результате динамика уменьшения температуры горячих электронов носит сложный осцилляционный характер (как, например, в [8]).

В этой статье при изучении особенностей поглощения ММЧ ультракоротких импульсов будем полагать, что разогрев электронного газа еще не снимает его сильного вырождения. Следовательно, температурные поправки к поглощению будут порядка $(k_B T_e / \varepsilon_F)^2$ (T_e — температура горячих электронов, ε_F — энергия Ферми), и ими можно пренебречь. Нас будет интересовать значительно более сильный эффект, связанный с релаксацией коллективных степеней свободы — поверхностных плазмонов. Дело в том, что ультракороткий импульс содержит большой набор гармоник, в том числе и такие, которые находятся в резонансе с частотами поверхностных плазмонов. Поэтому большая часть энергии ϕc импульса идет на возбуждение плазменных резонансов. Возбуждение поверхностного плазмона означает возбуждение электрического диполя. Если с задержкой по времени τ после возбуждения ϕc импульсом дипольного колебания послать второй такой же импульс, то результат поглощения второго импульса зависит от того, насколько величина τ больше или меньше времени жизни поверхностного плазмона. Когда τ больше упомянутого времени жизни, тогда поглощение обоих импульсов происходит независимо и поглощаемая энергия равна сумме поглощенной энергии от каждого импульса. Если же τ меньше времени жизни поверхностного плазмона, то результат поглощения второго импульса будет зависеть от того, в какой фазе застанет второй импульс колебания диполя, возбужденного первым импульсом. В результате суммарное поглощение двух импульсов может быть как больше, так и меньше суммы энергии поглощения двух нескоррелированных импульсов. Под нескоррелированными мы понимаем такие импульсы, которые разнесены во времени на τ , больше времени релаксации коллективных степеней свободы.

Как было показано нами в [9,10], полуширина плазменного резонанса эллипсоидальной ММЧ, обусловленная рассеянием электронов на колебаниях решетки и поверхности кластера, равна

$$\gamma_j(\omega) = 2\pi L_j \sigma_{jj}(\omega).$$

Здесь $\gamma_j(\omega)$ характеризует затухание дипольного колебания вдоль j -й оси эллипсоида на частоте ω , L_j — фактор деполяризации вдоль этой же оси, а $\sigma_{jj}(\omega)$ — диагональные компоненты тензора оптической проводимости. Проводимость становится скаляром для случаев, когда размер частицы больше длины свободного пробега электрона в частице, а также, когда частица имеет сферическую форму. Время жизни плазменного колебания $t_j = 1/\gamma_j$. Как известно, ММЧ сферической формы обладают одним поверхностным плазмонным резонансом, а ММЧ эллипсоидальной формы — тремя. От формы частицы зависят не только частоты, но и полуширины плазменных резонансов. Мы будем исследовать зависимость поглощения двух последовательных ультракоротких импульсов от времени задержки τ и формы частицы. Заметим, что зависимость оптических свойств от формы частицы не является малой поправкой к результатам, полученным для сферических частиц. Известно, что зависимость от формы частицы (при одинаковых объемах) может изменять результат поглощения на порядки величин [9,10].

Теперь несколько слов об используемом нами методе. Существует огромное количество моделей и методов исследования поверхностных плазмонов (их обзор см. [11]). В этой и предыдущих работах использован метод кинетического уравнения и его решения на найденных характеристиках. Такой подход имеет те преимущества, что он позволяет рассматривать влияние формы частицы, а также разрешает исследовать частицы размерами как больше, так и меньше длины свободного пробега электрона l , или в одном направлении больше, а в другом меньше l . Им удобно пользоваться в случаях, когда квантование электронного спектра не существенно (размер частицы должен быть намного больше дебройлевской длины волны электрона).

До сих пор в интерпретации экспериментальных данных часто используют оценки, полученные на основе формул Ми или Друде [1], пригодных лишь для случая частиц с размерами, превышающими l . Теоретически рассматриваемый вопрос остается мало изученным, в особенности для ММЧ несферической формы.

Особенности поглощения одиночных ультракоротких импульсов в ММЧ мы рассмотрели недавно в [12]. На основе кинетического подхода в настоящей работе изучены особенности поглощения двойных ультракоротких импульсов частицами, размеры которых могут быть меньше l . В частности, исследованы: энергия коллективных возбуждений, которая поглощается

частицей при малых плазмонных затуханиях или широких лазерных импульсах; зависимость этой энергии от формы и размеров частицы, частоты несущей волны, длительности падающих импульсов, времени задержки между ними.

Работа структурирована следующим образом. Во второй части описана модель и исходные принципы задачи. Третья — посвящена плазмонным резонансам и обсуждению основных результатов для случаев малых плазмонных затуханий и широких импульсов, и в четвертой — представлены выводы, полученные в работе.

2. Модель и исходные принципы

Пусть на ММЧ падает двойной лазерный импульс с интервалом времени τ один после другого. Будем предполагать, что оба импульса имеют одинаковые длительность, несущую частоту ω_0 и амплитуду. Тогда суммарное электрическое поле двух волн в какой-либо точке \mathbf{r} в момент времени t можно задать в виде

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = \mathbf{E}_1(\mathbf{r}, t) + \mathbf{E}_2(\mathbf{r}, t), \quad \mathbf{E}_2(\mathbf{r}, t) = \mathbf{E}_1(\mathbf{r}, t + \tau), \quad (1)$$

где в качестве $E_1(\mathbf{r}, t)$ выберем выражение [12]

$$\mathbf{E}_1(\mathbf{r}, t) = \mathbf{E}_0 \exp \left[-\Gamma^2 \left(t - \frac{\mathbf{k}_0 \mathbf{r}}{\omega_0} \right)^2 \right] \cos \left[\omega_0 \left(t - \frac{\mathbf{k}_0 \mathbf{r}}{\omega_0} \right) \right]. \quad (2)$$

Здесь $|\mathbf{k}_0| = \omega_0/c$, Γ — величина, обратная длительности лазерного импульса, \mathbf{E}_0 имеет смысл максимального значения электрического поля в импульсе. Кроме электрической, поле лазерного импульса имеет также и магнитную компоненту, связанную с электрической соответствующим уравнением Максвелла:

$$\text{rot } \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = -\frac{1}{c} \frac{\partial}{\partial t} \mathbf{H}(\mathbf{r}, t). \quad (3)$$

Задав $\mathbf{E}(\mathbf{r}, t)$ в виде (1), установим с помощью (3), каковым будет импульс магнитного поля. Наиболее просто эта связь выглядит между фурье-компонентами этих величин. В самом деле, из (1) мы получаем:

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}, \omega) = \int_{-\infty}^{\infty} \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) e^{i\omega t} dt = \mathbf{E}_1(\mathbf{r}, \omega) (1 + e^{-i\omega\tau}), \quad (4)$$

где

$$\mathbf{E}_1(\mathbf{r}, \omega) = \mathbf{E}_0 \frac{\sqrt{\pi}}{2\Gamma} \exp \left[i \mathbf{k}_0 \mathbf{r} \left(\frac{\omega}{\omega_0} \right) \right] \times \left[\exp \left(-\frac{(\omega - \omega_0)^2}{4\Gamma^2} \right) + \exp \left(-\frac{(\omega + \omega_0)^2}{4\Gamma^2} \right) \right]. \quad (5)$$

Используя явный вид (4) и выполнив преобразование Фурье в (3), находим

$$\mathbf{H}(\mathbf{r}, \omega) = \mathbf{m} \times \mathbf{E}(\mathbf{r}, \omega) (1 + e^{-i\omega\tau}), \quad (6)$$

где $\mathbf{m} = \mathbf{k}_0/k_0$ — единичный вектор.

Простейший вид фурье-компонента амплитуды электрического поля приобретает в случае $\Gamma \rightarrow 0$:

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}, \omega)_{\Gamma \rightarrow 0} = \pi \mathbf{E}_0 \exp \left[i \mathbf{k}_0 \mathbf{r} \left(\frac{\omega}{\omega_0} \right) \right] \times [\delta(\omega - \omega_0) + \delta(\omega + \omega_0)] [1 + \exp(-i\omega\tau)]. \quad (7)$$

Электрическое поле лазерного импульса вызывает внутри ММЧ потенциальное электрическое $\mathbf{E}_{in}(\mathbf{r}, t)$, а магнитное — индуцирует в частице вихревое электрическое поле $\mathbf{E}_{ed}(\mathbf{r}, t)$. Чтобы найти выражение для энергии, поглощаемой ММЧ, нужно знать внутренние поля $\mathbf{E}_{in}(\mathbf{r}, t)$ и $\mathbf{E}_{ed}(\mathbf{r}, t)$. Для их определения обратим внимание на особенность фурье-компонент (4) и (6), связанную с их зависимостью от координаты. Если характерный размер частицы R такой, что

$$k_0 R \ll 1, \quad (8)$$

т.е. длина несущей волны значительно больше размера ММЧ, то координатной зависимостью фурье-компонент $\mathbf{E}(\mathbf{r}, \omega)$ и $\mathbf{H}(\mathbf{r}, \omega)$ внутри частицы можно пренебречь [13]. А это означает, что при выполнении неравенства (8), при определении полей внутри ММЧ можно полагать фурье-компонент этих полей таковыми, какими они были бы в пространственно однородных полях

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}, \omega) \rightarrow \mathbf{E}(0, \omega), \quad \mathbf{H}(\mathbf{r}, \omega) \rightarrow \mathbf{H}(0, \omega). \quad (9)$$

Для несферической ММЧ, имеющей, например, форму эллипсоида, это позволяет нам записать внутреннее электрическое

$$(E_{in}(\omega))_j \approx \frac{E_j^{(0)}(0, \omega)}{1 + L_j [\varepsilon(\omega) - 1]} \quad (10)$$

и вихревое магнитное поле

$$(E_{ed}(\mathbf{r}, \omega))_x \approx i \frac{\omega}{c} \left(\frac{z}{R_z^2 + R_x^2} H_y^{(0)}(0, \omega) - \frac{y}{R_x^2 + R_y^2} H_z^{(0)}(0, \omega) \right) R_x^2, \quad (11)$$

подобно, как в [9]. Остальные компоненты вихревого поля можно получить из (11) циклической перестановкой индексов. В формулах (10), (11) $\varepsilon(\omega) = \varepsilon'(\omega) + i\varepsilon''(\omega)$ — зависящая от частоты комплексная диэлектрическая проницаемость частицы, L_j — геометрические факторы (известные также, как коэффициенты

деполяризации [13], $j = x, y, z$, R_x, R_y, R_z — полуоси эллипсоида в направлениях x, y и z соответственно.

Как следует из (10) и (11), однородное внешнее электрическое поле порождает внутри эллипсоидальной ММЧ также однородное потенциальное поле, в то время как однородное внешнее магнитное поле генерирует внутри частицы координатно-зависимое вихревое поле. Внутренние поля $\mathbf{E}_{in}(\mathbf{r}, t)$ и $\mathbf{E}_{ed}(\mathbf{r}, t)$ индуцируют в частице соответствующие токи $\mathbf{j}_{in}(\mathbf{r}, t)$ и $\mathbf{j}_{ed}(\mathbf{r}, t)$. В результате частица поглощает энергию от ЭМ поля падающей лазерной волны. Полную энергию этого поглощения в интегральном виде можно представить как [12]

$$w = \int_{-\infty}^{\infty} dt W(t) = w_e + w_m = \frac{1}{2} \operatorname{Re} \int_{-\infty}^{\infty} dt \int_V d\mathbf{r} [\mathbf{j}_e(\mathbf{r}, t) \mathbf{E}_{in}^*(\mathbf{r}, t) + \mathbf{j}_{ed}(\mathbf{r}, t) \mathbf{E}_{ed}^*(\mathbf{r}, t)], \quad (12)$$

где интегрирование ведется по всему объему частицы V , $W(t)$ — поглощаемая мощность. Поглощение, вызванное полем $\mathbf{E}_{in}(\mathbf{r}, t)$, называют электрическим, а поглощение, обусловленное полем $\mathbf{E}_{ed}(\mathbf{r}, t)$ — магнитным поглощением. Опираясь на равенство

$$\int_{-\infty}^{\infty} \mathbf{j}(\mathbf{r}, t) \mathbf{E}^*(\mathbf{r}, t) dt = \int_{-\infty}^{\infty} \mathbf{j}(\mathbf{r}, \omega) \mathbf{E}^*(\mathbf{r}, \omega) \frac{d\omega}{2\pi},$$

вытекающее, в частности, из соотношения Парсевеля для интеграла Фурье [14], (12) можно представить еще так:

$$w = \frac{1}{4\pi} \int_{-\infty}^{\infty} d\omega \operatorname{Re} \int_V d\mathbf{r} [\mathbf{j}_e(\mathbf{r}, \omega) \mathbf{E}_{in}^*(\mathbf{r}, \omega) + \mathbf{j}_{ed}(\mathbf{r}, \omega) \mathbf{E}_{ed}^*(\mathbf{r}, \omega)]. \quad (13)$$

Величины $\mathbf{E}_{in}(\omega)$ и $\mathbf{E}_{ed}(\mathbf{r}, \omega)$, в соответствии с (10), (11), нам уже известны. Остается задача нахождения фурье-компонент плотности токов $\mathbf{j}_{in}(\mathbf{r}, \omega)$ и $\mathbf{j}_{ed}(\mathbf{r}, \omega)$. В общем случае ток в точке \mathbf{r} частицы, вызванный внутренними полями $\mathbf{E}_{in}(\omega)$ и $\mathbf{E}_{ed}(\mathbf{r}, \omega)$, можно записать как интеграл по всем скоростям электронов \mathbf{v}

$$\mathbf{j}(\mathbf{r}, \omega) = 2e \left(\frac{m}{2\pi\hbar} \right)^3 \int_{-\infty}^{\infty} d^3\mathbf{v} \mathbf{v} f_1(\mathbf{r}, \mathbf{v}, \omega), \quad (14)$$

где e — заряд, m — масса электрона, $f_1(\mathbf{r}, \mathbf{v}, \omega)$ — фурье-компонента неравновесной функции распределения, которую рассматривают как добавку к равновесной функции распределения Ферми $f_0(\varepsilon)$, зависящей лишь от кинетической энергии электрона ε . Функцию $f_1(\mathbf{r}, \mathbf{v}, \omega)$ ищут как решение соответствующего линеаризованного кинетического уравнения

Больцмана. Как правило, оно записывается для зависимой от времени функции распределения (см., например, [9]). Если сделать фурье-преобразование этого уравнения и принять во внимание для полей разложение (4) в интеграл Фурье и

$$f_1(\mathbf{r}, \mathbf{v}, \omega) = \int_{-\infty}^{\infty} f_1(\mathbf{r}, \mathbf{v}, t) e^{i\omega t} dt,$$

то в результате для f_1 получаем следующее уравнение:

$$(\mathbf{v} - i\omega) f_1(\mathbf{r}, \mathbf{v}, \omega) + \mathbf{v} \frac{\partial}{\partial \mathbf{r}} f_1(\mathbf{r}, \mathbf{v}, \omega) + e \mathbf{v} [\mathbf{E}_{in}(\omega) + \mathbf{E}_{ed}(\mathbf{r}, \omega)] \frac{\partial}{\partial \varepsilon} f_0(\varepsilon) = 0, \quad (15)$$

где \mathbf{v} — объемная частота столкновений. Уравнение (15) должно быть дополнено еще соответствующими граничными условиями. В качестве таких выберем условия диффузного отражения электронов от внутренних стенок частицы

$$f_1(\mathbf{r}, \mathbf{v}, \omega)|_S = 0, \quad \mathbf{v}_n < 0. \quad (16)$$

В (16) \mathbf{v}_n — нормальная к поверхности S составляющая скорости. Обоснование таких граничных условий представлено, в частности, в [9]. Удовлетворить уравнению (15) и граничному условию (16) удастся благодаря переходу к деформированным переменным

$$x'_i = x_i \frac{R}{R_i}, \quad \mathbf{v}'_j = \mathbf{v}_j \frac{R}{R_j}.$$

В этих переменных эллипсоид принимает форму равной ему по объему сферы с радиусом R .

В зависимости от частоты волны, ее поляризации, размера и формы ММЧ доминирующим в частице может быть как электрическое, так и магнитное поглощение [9]. С другой стороны, судя по тому, насколько частота падающей волны отличается от частоты плазмонного резонанса, преобладающим может быть индивидуальный или коллективный механизм поглощения. В этой работе основное внимание обращено на поглощение ультракоротких лазерных импульсов в области плазмонных резонансов. Тем самым будем учитывать только коллективный механизм, являющийся составной частью электрического поглощения. Вклад магнитного поля в коллективное поглощение рассмотрен нами недавно ([12], вторая ссылка). Поэтому далее ограничимся в (13) только слагаемым, относящимся к электрической составляющей ЭМ поля. Тогда решение уравнения (15) (при $\mathbf{E}_{ed} = 0$) можно записать как

$$f_1(\mathbf{r}', \mathbf{v}', \omega) = -e \frac{\partial f_0}{\partial \varepsilon} \mathbf{v}' \mathbf{E}'_{in} \frac{1 - \exp[-(\mathbf{v} - i\omega) t'(\mathbf{r}', \mathbf{v}')] }{\mathbf{v} - i\omega}, \quad (17)$$

где

$$t'(\mathbf{r}', \mathbf{v}') = \frac{1}{v'^2} [\mathbf{r}'\mathbf{v}' + \sqrt{(R^2 - r'^2)v'^2 + (\mathbf{r}'\mathbf{v}')^2}], \quad (18)$$

$v' = |\mathbf{v}'|$. В нулевом приближении по малому отношению $k_B T / \varepsilon_F$ производную по энергии электрона в (17) заменим на

$$\frac{\partial f_0}{\partial \varepsilon} \rightarrow -\delta(\varepsilon - \varepsilon_F),$$

где ε_F – энергия Ферми.

Таким образом, для нахождения энергии электрического поглощения, согласно (13), необходимо поэтапно выполнить ряд шагов: подставить найденную функцию $f_1(\mathbf{r}, \mathbf{v}, t)$ в (14) и получить фурье-компоненты плотности тока. Принимая во внимание, что $\mathbf{E}_{\text{in}}(\omega)$ задается выражением (10), найденные фурье-компоненты поля и плотности тока подставим в (13). Подобная процедура описана детально в [9], и мы не будем ее повторять. Заметим лишь, что кинетическое уравнение (15) полностью совпадает с соответствующим уравнением (27) работы [9], достаточно лишь заменить $\mathbf{E}_{\text{in}}(\omega) \rightarrow \mathbf{E}_{\text{loc}}$.

3. Плазменные резонансы

Выражение, стоящее под интегралом, по частотам в (13) формально ничем не отличается от исходного в работе [9]. Поэтому можно воспользоваться результатами [9] (в частности формулой (75)) и записать полную энергию электрического поглощения в виде

$$w_e = \frac{V}{4\pi} \sum_{j=1}^3 \int_{-\infty}^{\infty} \omega^4 \frac{\sigma_{jj}(\omega) |E_j^{(0)}(0, \omega)|^2}{(\omega^2 - \omega_j^2)^2 + [4\pi L_j \sigma_{jj}(\omega)]^2 \omega^2} d\omega, \quad (19)$$

где квадрат частотной зависимости $E_j^{(0)}(0, \omega)$, согласно (4), задается выражением

$$|E_j^{(0)}(0, \omega)|^2 = 2 |E_{1j}^{(0)}(0, \omega)|^2 (1 + \cos \omega t), \quad (20)$$

а второе слагаемое в знаменателе (19) определяет затухание плазмона на частоте ω . Затухание для каждого из направлений j управляется упомянутым выше фактором L_j , т.е. зависит от геометрической формы ММЧ, а также от соответствующей диагональной компоненты тензора оптической проводимости. В общем случае при произвольном соотношении длины свободного пробега электрона и размеров частицы эти компоненты определяются выражениями [10]

$$\sigma_{\perp} = \frac{9}{8} \frac{n_e e^2}{m} \text{Re} \left[\frac{1}{v} \int_0^{\pi/2} d\theta \sin^3 \theta \psi(q) \Big|_{\varepsilon=\varepsilon_F} \right], \quad (21)$$

$$\sigma_{\parallel} = \frac{9}{4} \frac{n_e e^2}{m} \text{Re} \left[\frac{1}{v} \int_0^{\pi/2} d\theta \sin \theta \cos^2 \theta \psi(q) \Big|_{\varepsilon=\varepsilon_F} \right], \quad (22)$$

где n_e – концентрация электронов, а

$$\psi(q) = \frac{4}{3} - \frac{2}{q} + \frac{4}{q^3} - \frac{4}{q^2} \left(1 + \frac{1}{q} \right) e^{-q}, \quad (23)$$

$$q = \frac{2\sqrt{v}}{v'} R = \frac{2(v - i\omega)}{v'} R. \quad (24)$$

Угловая зависимость ψ содержится в скорости v' . Для сфероидальной частицы (с полуосями $R_x = R_y \equiv R_{\perp}$, $R_z = R_{\parallel}$), которую будем рассматривать далее, v' можно представить в виде

$$v' = v R \sqrt{\left(\frac{\cos \theta}{R_{\parallel}} \right)^2 + \left(\frac{\sin \theta}{R_{\perp}} \right)^2}. \quad (25)$$

В случае, когда длина свободного пробега электрона превышает размеры частицы, при высоких частотах, на которых и наблюдаются плазменные резонансы, из (21), (22) находим обратно пропорциональную зависимость компонент электропроводности от квадрата частоты

$$\sigma_{(\parallel)}(\omega) = \frac{9}{32\pi} \frac{v_F}{R_{\perp}} \left(\frac{\omega_p}{\omega} \right)^2 \left(\frac{\eta(e_s)}{\rho(e_s)} \right), \quad (26)$$

что соответствует [9]. В (26) v_F — скорость электронов на сфере Ферми, ω_p – частота плазменных колебаний электронов в металле, $\eta(e_s)$ и $\rho(e_s)$ — некоторые функции, зависящие от эксцентриситета сфероида e_s (их аналитический вид см. в [9], а графический ход в зависимости от соотношения полуосей сфероида — в [12]). Поведение функций $\eta(e_s)$ и $\rho(e_s)$ определяет в основном и поведение компонент тензора проводимости в зависимости от R_{\perp}/R_{\parallel} . Для сферической частицы $\eta(0) = \rho(0) = 2/3$. В (26) верхнему (нижнему) символу в круглых скобках слева равенства соответствует верхняя (нижняя) функция в правой части равенства.

Подынтегральное выражение в (19) имеет острые максимумы. Эти максимумы связаны, во-первых, с плазменными резонансами ($\gamma_j \rightarrow 0$), а во-вторых, с шириной ультракороткого импульса ($1/\Gamma \rightarrow 0$). В зависимости от параметров более острый пик можно использовать в качестве δ -функции и вычислить интеграл (19) аналитически.

3.1. Случай малых плазмонных затуханий

Если плазмонное затухание считать малым, тогда в (19) можно воспользоваться представлением для δ -функции [15]:

$$\delta(x) = \frac{1}{\pi} \lim_{\alpha \rightarrow 0} \frac{\alpha}{\alpha^2 + x^2}.$$

Легко получить для поглощенной энергии выражение

$$w_e |_{\gamma(\omega) \rightarrow 0} \approx \frac{V}{64} \left(\frac{\omega_p}{\Gamma} \right)^2 \sum_{j=1}^3 \left| \mathbf{E}_{0j} \left[\exp \left[-\frac{(\omega_j - \omega_0)^2}{4\Gamma^2} \right] + \exp \left[-\frac{(\omega_j + \omega_0)^2}{4\Gamma^2} \right] \right] \right|^2 (1 + \cos \omega_j \tau), \quad (27)$$

где

$$\omega_j = \sqrt{L_j} \omega_p. \quad (28)$$

Ограничимся рассмотрением (27) для ММЧ сферической формы и выберем для удобства такую поляризацию электрического поля, при которой можно бы одновременно возбуждать плазмонные колебания электронов как вдоль, так и поперек оси вращения сфероида. Если компоненту $\mathbf{E}_{0||}$ считать направленной вдоль, а $\mathbf{E}_{0\perp}$ — поперек оси вращения сфероида, то в общем случае такой поляризацией будет:

$$E_{0||} = |\mathbf{E}_0| \cos \theta; \quad E_{0\perp} = |\mathbf{E}_0| \sin \theta, \quad (29)$$

где θ — угол между осью вращения сфероида и вектором напряженности падающего электрического поля \mathbf{E}_0 . Тогда частоты (28) можно переписать как частоты колебаний электронов вдоль и поперек упомянутой оси

$$\omega_{||,\perp} = \sqrt{L_{||,\perp}} \omega_p. \quad (30)$$

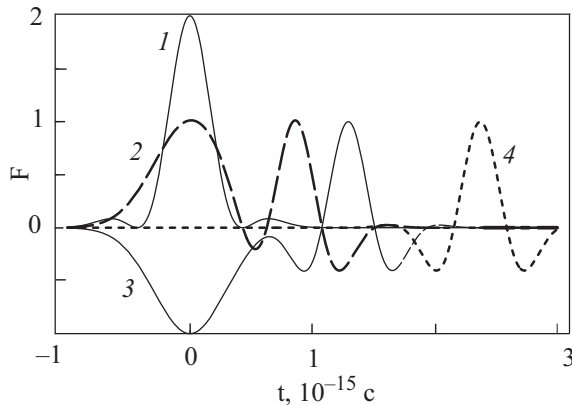


Рис. 1. Временная зависимость нормированного на E_0 электрического поля двойного лазерного импульса F на частоте $\omega_0 = \Omega$ при различных временах задержки, задаваемых выражениями (26)–(28): $\tau = 0$ (1), $\tau = 2\pi/\Omega$ (2), $\tau = 3\pi/\Omega$ (3), $\tau = \pi/2\Omega$ (4).

При заданных $L_{||,\perp}$ они будут представлять собой частоты соответствующих плазмонных резонансов в несферической ММЧ.

На рис. 1 показаны временные зависимости амплитуд падающих на частицу импульсов при некоторых характерных временах задержки между импульсами τ . Кривая 1 соответствует $\tau = 0$. В этом случае максимальное электрическое поле суммарного импульса удваивается. Выберем в качестве нормировочной частоту поверхностного плазмона в сферической частице $\Omega \equiv \omega_p/\sqrt{3}$. Если τ является конечной величиной, то, очевидно, удобно рассмотреть следующие три случая:

$$\tau = 2n \frac{\pi}{\Omega}, \quad (31)$$

где мы полагаем $n = 0, 1, 2, 3, \dots$ При этом амплитуды двух идущих друг за другом импульсов будут находиться в фазе (кривая 2), и с ростом n увеличивается только временное расстояние между ними;

$$\tau = (2n + 1) \frac{\pi}{\Omega}, \quad (32)$$

и амплитуды двух импульсов находятся в противоположных фазах (кривая 3). Наконец,

$$\tau = \left(n + \frac{1}{2} \right) \frac{\pi}{\Omega}. \quad (33)$$

В этом случае из двух импульсов проявляется только второй с одинарной амплитудой (кривая 4).

Роль фазовых соотношений легче понять, если записать феноменологические уравнения для колебаний электрических диполей, связанных с соответствующими поверхностными плазмонами. Так, например, для колебания дипольного момента \mathbf{d} вдоль j -й оси эллипсоида можно записать уравнение

$$\ddot{\mathbf{d}}_j + 2\gamma_j \dot{\mathbf{d}}_j + \omega_j^2 \mathbf{d} = \frac{n_e e^2}{m} \mathbf{E}_j(t). \quad (34)$$

Если в (34) сделать фурье-преобразование и записать энергию, получаемую осциллятором от поля

$\mathbf{E}_j(t)$, то можно прийти к выражению (19). Феноменологический подход намного проще, чем изложенный выше кинетический метод, однако в нем параметры ω_j и γ_j не определены, и их необходимо задавать извне. В кинетическом подходе эти параметры находятся явно с учетом граничных условий.

Представив в (34) $\mathbf{E}_j(t)$ в виде суммы двух импульсов, как в (1), можно получить закон, по которому будет релаксировать дипольный момент, наведенный первым импульсом, после окончания его действия (т.е., при $t = t_0$) в виде

$$\mathbf{d}_j(t) = \mathbf{d}_j(t_0) \exp[-\gamma_j(t-t_0)] \cos \left[(t-t_0) \sqrt{\omega_j^2 - \gamma_j^2} \right]. \quad (35)$$

Теперь ясно, что если с задержкой $\tau = t - t_0$, удовлетворяющей условию $\gamma_j \tau < 1$, налетает на ММЧ второй импульс, то его действие будет зависеть от того, в фазе или противофазе электрическое поле второго импульса находится с фазой релаксирующего диполя (35). Условие

$$\gamma_j t_j \approx 1 \quad (36)$$

определяет время жизни диполя. В частности, для сферической частицы, радиус которой $R < l$, будем иметь

$$\gamma_j \approx \frac{3}{8} \frac{\nu_F}{R}. \quad (37)$$

Появление в (37) размерной зависимости связано с фактом преобладания (при заданном R) поверхностного рассеяния над объемным. Из (36) находим для времени жизни поверхностного плазмона в частице, например с радиусом $R = 100 \text{ \AA}$, значение $t_j \sim 20$ фс.

Заметим еще, что уравнение (34) описывает линейный осциллятор. При больших амплитудах может проявляться эффект нелинейности [16], который здесь мы не будем учитывать.

Перейдем далее к более детальному изучению поглощения частицей импульсов разной формы и обсуждению полученных результатов. Для иллюстрации вычислим величину

$$S_e = \frac{4\pi w_e}{|\mathbf{E}_0|^2 V} \quad (38)$$

отношения энергии, поглощаемой единицей объема ММЧ, к энергии падающей волны.

Задавшись определенной шириной падающего импульса, проиллюстрируем зависимость S_e от меры сплюснутости или вытянутости ММЧ сфероидальной формы, задаваемой отношением R_{\perp}/R_{\parallel} . На рис. 2

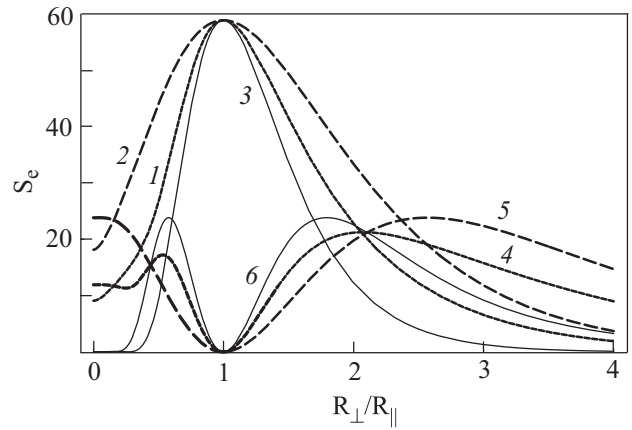


Рис. 2. Зависимость поглощенной энергии сфероидальной ММЧ (на частоте несущей волны, совпадающей с частотой плазмонного резонанса в сферической частице) от степени сплюснутости или вытянутости частицы, определяемой отношением R_{\perp}/R_{\parallel} , при разных углах θ : $\pi/4$ (1) и (4), $\pi/2$ (2) и (5), 0 (3) и (6) и временах задержки τ : $2\pi/\Omega$ (1), (2) и (3), $3\pi/\Omega$ (4), (5) и (6); $\Gamma = 1,46 \cdot 10^{15} \text{ c}^{-1}$.

изображена такая зависимость (на частоте несущей волны, совпадающей с частотой поверхностного плазмона для сферической частицы, $\omega_0 = \Omega$) при различных углах ориентации электрического поля лазера относительно частицы. Здесь и далее расчеты проведены с использованием формул (27), (29), (30), (38) при концентрации электронов в частице $5 \cdot 10^{22} \text{ cm}^{-3}$ и $\omega_p \approx 1,26 \cdot 10^{16} \text{ c}^{-1}$. При одинаковой длительности двух импульсов ($1/\Gamma$) мы выбрали два разных временных интервала τ между их возникновением, соответствующих четному (31) (кривые 1–3) и нечетному (32) (кривые 4–6) случаям.

На рисунке видно, что кривые 1–3 имеют максимум в поглощении энергии для частиц сферической формы ($R_{\perp}/R_{\parallel} = 1$), тогда как при нечетных τ (кривые 4–6) — получаем минимум. Такое поведение обусловлено тем, что в первом случае два импульса находятся в фазе и сферические частицы максимально поглощают, а в последнем — два импульса находятся в противоположных фазах и сферические частицы минимально поглощают в сравнении с частицами других форм, поскольку в этом случае равные по величине амплитуды двух импульсов гасят друг друга.

При угле $\theta = \pi/4$ в равной мере задействованы как поперечные, так и продольные относительно оси вращения сфероида плазмонные колебания. При углах $\theta = 0$ и $\pi/2$ ответственными за поглощение становятся только упомянутые поперечные или продольные колебания плазмонов. При нечетных τ максимумы в поглощении достигаются попарно для вытянутых и сплюснутых ММЧ. Наибольшего поглощения в этом случае можно достичь при углах $\theta = 0$ и $\theta = \pi/2$.

3.2. Случай широких лазерных импульсов

В заключение рассмотрим качественно другой предельный переход, когда ширина падающего лазерного импульса большая. Используя (4), вычислим величину $(\mathbf{E}(0, \omega))^2$, входящую в (19). Удобно воспользоваться следующим представлением для δ -функции [15]:

$$\delta(x) = \frac{1}{\sqrt{\pi}} \lim_{\alpha \rightarrow 0} \frac{1}{\alpha} e^{-\left(\frac{x}{\alpha}\right)^2}.$$

Тогда получим

$$(\mathbf{E}(0, \omega))^2 \approx \mathbf{E}_0^2 \left(\frac{\pi}{2}\right)^{3/2} \frac{1}{\Gamma} [\delta(\omega - \omega_0) + \delta(\omega + \omega_0)]. \quad (39)$$

На основании (19) и (39) находим:

$$w_e|_{\Gamma \rightarrow 0} = \frac{V}{2} \sqrt{\frac{\pi}{2}} \frac{\omega_0^4}{\Gamma} \sum_j \frac{\sigma_{jj}(\omega_0) E_{0j}^2}{(\omega_0^2 - \omega_j^2)^2 + [2\gamma(\omega_0)]^2 \omega_0^2} (1 + \cos \omega_0 \tau), \quad (40)$$

где $\gamma_j(\omega)$ — полуширина плазмонной линии, которая в соответствии с (19) равна $2\pi L_j \sigma_{jj}(\omega)$. Как видим в (40), величина поглощенной энергии пропорциональна длительности импульса $1/\Gamma$. Если умножить выражение (40) на величину Γ , то получим мощность, которая в среднем поглощается частицей при облучении ее долгодействующими импульсами. При $\tau = 0$ эта величина отличается на множитель $\sqrt{\pi/2}/2$ от аналогичной величины, полученной для поглощения монохроматической волны*. Для сфероидальной частицы в области высоких частот, с использованием (26) из (40) получаем:

$$w_e|_{\Gamma \rightarrow 0} = \frac{9}{64} \frac{E_0^2}{\sqrt{2\pi}} \frac{V}{\Gamma} \omega_0^2 \omega_p^2 \frac{v_F}{R_{\perp}} \left(\frac{\eta(e) \cos^2 \theta}{(\omega_0^2 - \omega_{\parallel}^2)^2 + [2\gamma_{\parallel}(\omega_0)]^2} + \frac{\rho(e) \sin^2 \theta}{(\omega_0^2 - \omega_{\perp}^2)^2 + [2\gamma_{\perp}(\omega_0)]^2} \right) (1 + \cos \omega_0 \tau), \quad (41)$$

где частоты $\omega_{\perp, \parallel}$ определяется выражением (30), а затухания

$$\gamma \left(\begin{matrix} \parallel \\ \perp \end{matrix} \right) (\omega_0) = 2\pi L \left(\begin{matrix} \parallel \\ \perp \end{matrix} \right) \sigma \left(\begin{matrix} \parallel \\ \perp \end{matrix} \right) (\omega_0). \quad (42)$$

Для сравнения со случаем малых плазмонных затуханий будем вычислять отношение энергий (38), где величина w_e задается формулой (41). Если в качестве несущей выбрать частоту $\omega_0 = \Omega$, то, как и следовало ожидать, найдем, что среди ММЧ разных форм на этой частоте максимально поглощают частицы сферической формы. Причем, как и в случае малых плазмонных затуханий, поглощение растет с уменьшением Γ . Здесь следует обратить внимание на одно из отличий, возникающих в двух рассматриваемых пределах: в последнем случае поглощение становится зависимым от радиуса частицы, величины, которая не была характерной для случая малых плазмонных затуханий.

На рисунках ниже показано изменение характера поглощения широких лазерных импульсов при различных условиях. Расчеты проводили с исполь-

зованием формул (38), (41) для лазерного луча, электрическое поле которого направлено под углом $\theta = \pi/4$ к оси сфероида при $v_F \approx 1,32 \cdot 10^8$ см/с и упомянутой (после (38)) концентрации электронов. Выясним вначале, как поглощают частицы разных размеров с изменением их формы.

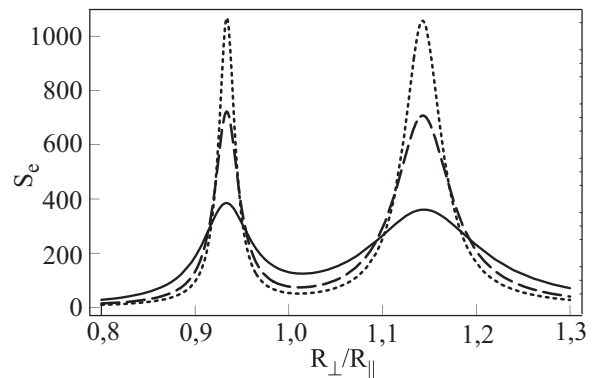


Рис. 3. Зависимость поглощенной энергии от отношения R_{\perp}/R_{\parallel} на частоте $\omega_0 = 7,08 \cdot 10^{15}$ с⁻¹, меньшей частоты плазмонного резонанса сферической ММЧ с радиусами R , Å: 50 (сплошная кривая), 100 (штриховая кривая), 150 (пунктирная кривая); $\tau = 2\pi/\Omega$; $\Gamma = 1,46 \cdot 10^{15}$ с⁻¹.

* Множитель $1/2$ появился в связи с тем, что в [9] поле ЭМ волны мы задавали в виде $\mathbf{E}^{(0)} \exp[i(\omega t - \mathbf{k}\mathbf{r})]$, тогда как здесь при $\Gamma \rightarrow 0$, согласно (1), имеем $\mathbf{E}^{(0)} \cos(\omega_0 t - \mathbf{k}_0 \mathbf{r})$. Дополнительный множитель $\sqrt{\pi/2}$ обусловлен гауссоподобным, а не прямоугольным импульсом.

Рисунок 3 иллюстрирует зависимость поглощенной энергии от меры сплюснутости или вытянутости сфероидальных ММЧ разных объемов для случая, когда несущая частота лазерного излучения меньше Ω и время запаздывания между импульсами $\tau = 2\pi/\Omega$. На рисунке видно, что в зависимости относительного поглощения от отношения R_{\perp}/R_{\parallel} при $\theta = \pi/4$ имеются два максимума, соответствующие резонансам с частотами плазмонных колебаний электронов в вытянутом и сплюснутом металлических сфероидах. Заметно, что большая часть энергии лазерного луча поглощается более широким набором сплюснутых частиц, чем частиц вытянутой формы. Нетрудно убедиться, что в случае несущих частот, превышающих частоту Ω , наоборот, более широким будет набор вытянутых частиц. Другими словами, на частотах $\omega_0 < \Omega$ больше греются сплюснутые, а на частотах $\omega_0 > \Omega$ — вытянутые частицы.

Расчеты показывают (рис. 3), что с ростом объема сфероидальной частицы (при сохранении отношения между полуосями сфероида) или радиуса эквивалентной сферы, величина поглощенной ММЧ энергии заметно возрастает. При этом, что существенно, частотного смещения максимумов поглощения не происходит.

Зафиксировав форму сфероида и его объем (задав R_{\perp}/R_{\parallel} и R), изучим в заключение особенности поглощения при разных τ в зависимости от ω_0/Ω . Пусть, как и выше, падающие импульсы будут одинаковой длительности, и их электрическое поле образует с осью сфероидальной ММЧ, например, угол $\theta = \pi/4$. На примере слабовытянутой ММЧ на рис. 4 показан ход поглощенной энергии. В узком интервале частот обнаружено два пика поглощения (дублет) по разные стороны от частоты Ω : левосторонний (на частотах $\omega_0 < \Omega$) отвечает плазмонным колебаниям с частотой ω_{\parallel} вдоль, а правосторонний (на частотах $\omega_0 > \Omega$) с частотой ω_{\perp} — поперек оси вращения сфероида. Обратная ситуация характерна для

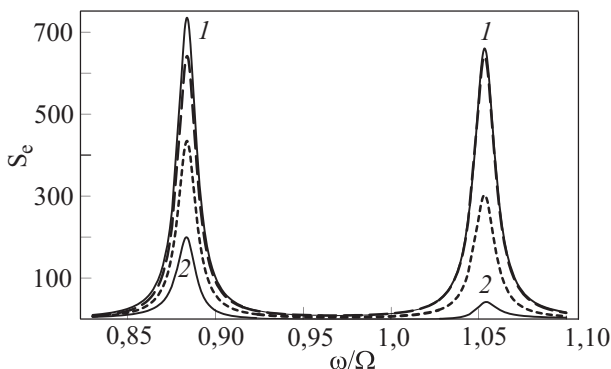


Рис. 4. Зависимость поглощенной энергии от несущей частоты лазерного луча ($\Gamma = 1,46 \cdot 10^{15} \text{ c}^{-1}$) для вытянутых ММЧ ($R_{\perp}/R_{\parallel} = 0,75$) при разных временах запаздывания τ : 0 (сплошная кривая 1), $\pi/2\Omega$ (пунктирная кривая), $2\pi/\Omega$ (штриховая кривая), $3\pi/\Omega$ (сплошная кривая 2).

сплюснутых ММЧ: левосторонний максимум у них соответствует частоте ω_{\perp} , а правосторонний — ω_{\parallel} . Описанное расщепление пика поглощения наблюдалось экспериментально (например, [17]) для сфероидальных наночастиц серебра, возбуждаемых вдоль длинной и короткой осей.

В отличие от случая малых плазмонных затуханий, здесь уже в отсутствие задержки между импульсами ($\tau = 0$) пики поглощения заметно отличаются высотой. С увеличением вытянутости ММЧ кривая поглощения для каждого τ расщепляется на две с пиками на частотах ω_{\parallel} и ω_{\perp} . Высота (интенсивность) этих пиков существенно зависит от времени задержки и может изменяться в интервале от нуля до максимально возможного значения, совпадающего со значением при $\tau = 0$.

С увеличением вытянутости ММЧ расстояние между пиками дублета увеличивается за счет преобладающего смещения в сторону длинных волн пика, обусловленного плазмонным резонансом на частоте ω_{\parallel} . Необходимо подчеркнуть, что такое смещение пика поглощения характерно только при изменении формы частицы, но не ее объема.

Относительной высотой пиков в дублете можно также управлять, изменяя ориентацию электрического поля лазерного импульса [12]. Напомним, что в случае одинарных импульсов ($\tau = 0$) при угле $\theta = \pi/4$ интенсивность обоих пиков одинакова, а при отклонении от этого угла становится разной. Так, например, для вытянутых ММЧ при $\theta > \pi/4$ интенсивность пика, связанного с резонансом на частоте ω_{\parallel} , падает, а интенсивность пика, обусловленного резонансом на частоте ω_{\perp} — возрастает. При углах $\theta < \pi/4$ происходит обратная ситуация: возрастает пик на частоте ω_{\parallel} и падает на частоте ω_{\perp} . Очевидно, что при угле $\theta = 0^\circ$ интенсивность пика на частоте ω_{\parallel} становится максимальной (возбуждаются плазмонные колебания электронов только вдоль оси вращения сфероида), вместе с тем исчезает резонанс на частоте ω_{\perp} , тогда как при угле $\theta = \pi/2$ он исчезает на частоте ω_{\parallel} и максимальным становится на частоте ω_{\perp} (возбуждаются плазмонные колебания электронов только в плоскости, перпендикулярной оси вращения сфероида). Проиллюстрированная на рис. 4 зависимость является комбинацией этих двух граничных случаев.

Наконец, заметим, что когда плазмонное затухание не является малым и падающие лазерные импульсы нельзя считать широкими, вычисление величины S_e с использованием (19) необходимо проводить численными методами. Мы провели в (19) такое численное интегрирование при разных радиусах ММЧ R (здесь и выше $R = (R_{\parallel}R_{\perp}^2)^{1/3}$), в интервале 50–400 Å. В целом оказалось, что численно рассчитанные S_e , во-первых, близки к значениям (несколь-

ко меньше их), полученным на основе приближенной формулы (27), а во-вторых, слабо зависят* от R при использованных выше значениях Γ . Практически, это означает, что затухание на частоте плазмонного резонанса лишь немного уменьшает поглощение энергии частицей. В пределах ошибки, не превышающей 7% в максимуме поглощения (при таких Γ), расчеты S_e можно проводить по формуле (27).

4. Выводы

Построена теория поглощения двойных ультракоротких лазерных импульсов малыми металлическими частицами несферической формы. Получены простые аналитические выражения, позволяющие определить энергию поглощения в зависимости от частоты несущей волны, длительности импульсов и времени задержки между их возникновением τ . Изучено поглощение импульсов с такими значениями τ , при которых они усиливают или гасят друг друга. Особое внимание уделено изучению специфики поглощения энергии сфероидальными металлическими частицами (определенной сплюснутости или вытянутости) в случае Ми-резонансов.

На частоте несущей волны, совпадающей с частотой поверхностного плазмона, найдено, что если два импульса находятся в фазе, то максимального поглощения, равного поглощению удвоенного импульса (при $\tau = 0$), можно достичь только для частиц сферической формы; если же два импульса находятся в противоположных фазах, то сферические частицы минимально поглощают в сравнении с частицами других форм. При временах задержки, обеспечивающих нахождение двух импульсов в противоположных фазах, вместо максимума в поглощении сферической ММЧ появляется минимум.

При различных углах ориентации электрического поля лазера относительно частицы максимальное поглощение при заданном Γ среди частиц разных форм достигается в сферической ММЧ при четных τ . При нечетных τ сферическая ММЧ минимально поглощает, в то же время максимумы в поглощении достигаются попарно для вытянутых и сплюснутых ММЧ.

Обсуждены особенности поглощения малыми металлическими частицами широких лазерных импульсов. В этом случае, в отличие от случая малых затуханий, поглощение становится зависимым от радиуса частицы. С ростом объема сфероидальной частицы (при сохранении отношения между полуосями сфероида) или радиуса эквивалентной сферы, возрастает поглощение энергии частицей, но частотного смещения максимума поглощения при этом не происходит. Найдено, что на

несущих частотах $\omega_0 < \Omega$ больше греются сплюснутые, а при $\omega_0 > \Omega$ — вытянутые частицы.

В сравнении со сферическими, сфероидальные вытянутые или сплюснутые ММЧ при возбуждении двойными ультракороткими лазерными импульсами с достаточно малым значением Γ могут образовывать в спектре поглощения дублет, связанный с плазмонными резонансами (вдоль и поперек оси вращения сфероида).

Формулы, полученные в работе, позволяют определить оптимальные характеристики лазерных импульсов, задержки между ними и ориентации мишени, при которых можно достичь наилучшего увеличения или подавления поглощения.

1. C.F. Bohren and D.R. Huffman, *Absorption and Scattering of Light by Small Particles*, Wiley, Weinheim (2004).
2. J.A.A.J. Perenboom, P. Wyder, and F. Meier, *Phys.Rep.* **78**, 173 (1981).
3. J.W. Haus et al., *J. Appl. Phys.* **65**, 1420 (1989); G. Weick, R.A. Molina, D. Weinmann, and R.A. Jalabert, *Phys. Rev.* **B72**, 115410 (2005).
4. X. Huang, P.K.Jain, I.H. El-Sayed, and M.A. El-Sayed, *Nanomed.* **2**, 681 (2007).
5. F. Calvayrac, P.-G. Reinhard, E. Suraud, and C. Ullrich, *Phys. Rep.* **337**, 493 (2000).
6. Б.М. Смирнов, *УФН* **170**, 495 (2000).
7. V.P. Krainov and M.B. Smirnov, *Phys. Rep.* **370**, 237 (2002).
8. G.V. Hartland, *J. Chem. Phys.* **116**, 8048 (2002).
9. P.M. Tomchuk and N.I. Grigorichuk, *Phys. Rev.* **B73**, 155423 (2006).
10. Н.И. Григорчук, П.М. Томчук, *ФНТ* **33**, 461 (2007).
11. J. M. Pitarke, V.M. Silkin, E.V. Chulkov, and P.M. Echeñique, *Rep. Prog. Phys.* **70**, 1 (2007).
12. П.М. Томчук, М.И. Григорчук, *УФЖ* **52**, 889 (2007); М.И. Григорчук, П.М. Томчук, *Журнал фізичних досліджень*, **12**, № 1 (2008).
13. Л.Д. Ландау, Е.М. Лифшиц, *Электродинамика сплошных сред*, Наука, Москва (1982).
14. Г. Бремерман, *Распределения, комплексные переменные и преобразования Фурье*, Мир, Москва (1968).
15. Г. Арфкен, *Математические методы в физике*, Атомиздат, Москва (1970).
16. S.V. Fomichev, S.V. Popruzhenko, D.F. Zaretsky, and W. Becker, *J. Phys.* **B36**, 3817 (2003).
17. M. Scharfe, R. Porath, T. Ohms, M. Aeschlimann, J.R. Krenn, H. Ditlbacher, F.R. Aussenegg, and A. Liebsch, *Appl. Phys.* **B73**, 305 (2001).

* Эта зависимость возникает в (19) из-за наличия γ , зависящего от R_{\perp} , через компоненты тензора проводимости (26).

Theory of ultrashort double laser pulse
absorption by nonspherical
metallic particles of small size

N.I. Grigorchuk and P.M. Tomchuk

A theory is developed which allow the energy absorbed by nonspherical particles on irradiation by laser double pulse of the given duration to calculate in the region of surface plasmons excitation (Mie-resonances). For particles of oblate or prolate spheroidal shape the dependences of this energy on degree of deviation from spherical form, pulse duration, particle volume and on polarization of laser beam electric field with respect to spheroid rota-

tion axis are obtained. It is shown that depending on the time delay between two pulses the energy absorbed by a nanoparticle can be higher or less than the total absorbed energy of two no correlated pulses.

PACS: 78.67.Bf Nanocrystals and nanoparticles;
42.25.Bs Wave propagation, transmission
and absorption;
78.20.-e Optical properties of bulk materi-
als and thin films;
73.63.-b Electronic transport in nanoscale
and structures.

Keywords: ultrashort double laser pulse, metallic nanoparticle, Mie-resonances, surface plasmons.