

Сила давления оптического излучения на сфероидальную металлическую наночастицу вблизи плазмонного резонанса

Н.И. Григорчук

Інститут теоретичної фізики ім. Н.Н. Боголюбова НАН України
ул. Метрологічна 14-б, г. Київ, 03680, Україна
E-mail: ngrigor@bitp.kiev.ua

П.М. Томчук

Інститут фізики НАН України, пр. Науки, 46, г. Київ, 03028, Україна
E-mail: ptomchuk@iop.kiev.ua

Статья поступила в редакцию 11 декабря 2006 г., после переработки 26 февраля 2007 г.

Теоретически решается задача нахождения силы давления поляризованного светового излучения на сфероидальную металлическую наночастицу. Получены усредненные по периоду падающей волны аналитические выражения для этой силы, связывающие ее с тензором проводимости частицы. Показано, что консервативная и дисипативная компоненты силы давления существенно зависят от формы наночастицы, а также от ее ориентации по отношению к направлению падению излучения. Исследовано поведение сил давления вблизи плазмонного резонанса в сфероидальной металлической наночастице. Установлена зависимость частотного смещения резонансного пика давления излучения от формы частицы и его независимость от объема частицы.

Теоретично розв'язується задача знаходження сили тиску поляризованого світлового випромінювання на сфероїдальну металеву наночастинку. Одержано усереднені по періоду падаючої хвилі аналітичні вирази для цієї сили, що зв'язують її з тензором провідності частинки. Показано, що консервативна і дисипативна компоненти сили тиску істотно залежать від форми наночастинки, а також від її орієнтації відносно напрямку падіння випромінювання. Досліджено поведінку сил тиску поблизу плазмонного резонансу в сфероїдальній металевій наночастинці. Встановлено залежність частотного зсуву резонансного піка тиску випромінювання від форми частинки і його незалежність від об'єму частинки.

PACS : 03.50.De Классический электромагнетизм, уравнения Maxwellа;
41.20.-q Прикладной классический электромагнетизм;
78.20.-e Оптические свойства массивных материалов и тонких пленок;
78.67.Bf Нанокристаллы и наночастицы.

Ключевые слова: световое давление, поляризованное излучение, металлические наночастицы, тензор проводимости, плазмоны, плазмонный резонанс.

Введение

В последнее время интенсивно развиваются исследования давления лазерного излучения на незаряженные частицы [1–3], имеющие широкое практическое применение. В качестве примера достаточно назвать такие достижения лазерной оптики в этом направлении, как лазерное охлаждение атомов до температур,

составляющих доли микроКельвина, «лазерный насос» для разделения изотопов, получение бозе-Эйнштейновского конденсата, захват, удержание и манипулирование микрочастицами («optical tweezers» — оптические щипцы). Последнее нашло свое развитие в новейших биологических и медицинских технологиях по бесконтактному захвату и транспорту отдельных клеток [4]. Разработаны оптически управляемые

микромашины, не только удерживающие микрообъекты, но и передающие им вращательный момент импульса с контролем их вращения [5].

Все эти успехи ведут свое начало от пионерской работы Ашкина [6]. В работе [7] теоретически получена усредненная полная сила, действующая на субмиллиметровую сферическую частицу в гармонически изменяющемся со временем электрическом поле. Более интересным представляется случай несферических частиц [8], когда снимается вырождение по многим физическим параметрам. В [9] были рассмотрены металлические наночастицы эллипсоидальной формы и определены компоненты сил на основании тензора электропроводности. В случае несферических частиц его величина становится весьма чувствительной к размерам и форме частицы [10]. В работе [10] нами показано, что когда размер металлической частицы меньше длины свободного пробега электрона, то ее оптическая проводимость (а следовательно, и ее поляризуемость) становится тензорной величиной. При этом отношение между диагональными компонентами тензора поляризуемости (далее будем иметь дело только с ним) существенно зависит не только от частоты электромагнитной волны, но и от формы частицы. Последний фактор говорит о том, что характер сил, действующих на несферическую наночастицу, может значительно отличаться от тех же сил, действующих на сферическую частицу. В литературе этот вопрос мало исследован, поэтому в настоящей работе попытаемся уделить ему должное внимание.

Другим важным аспектом данной проблемы является вопрос о том, как зависимая от частоты сила может влиять на оптический отклик металла, в частности на плазменные резонансы [2]. Авторы [2] ограничились изучением случая сферической частицы на плоской поверхности, для которой длина свободного пробега электрона l мала в сравнении с размерами частицы a . Однако плазменные резонансы и ширины их линий должны зависеть от формы частицы. Поэтому прежде всего в отсутствие плоской поверхности необходимо учесть их дополнительную зависимость от формы частицы. Таким образом, второй целью нашего рассмотрения является изучение плазменного резонанса в силе давления лазерного излучения на несферическую металлическую частицу, в которой величина l произвольна по отношению к a . Это особенно может быть важно для металлических частиц весьма малых размеров, удержание которых в сфокусированных лазерных лучах является не простой задачей.

Исследованию перечисленных выше вопросов и посвящена данная работа, построенная следующим образом. Во втором разделе изложены основные положения теории, позволяющие определить силу давле-

ния лазерного излучения на несферическую металлическую частицу как в общем случае, так и для линейно или эллиптически поляризованной гауссовой волны. В третьем разделе обсуждается проблема плазменных резонансов в несферической металлической наночастице. В последнем разделе представлены основные результаты и выводы, полученные в работе.

2. Сила давления излучения

Предположим, что частица состоит из материала с комплексной диэлектрической проницаемостью $\epsilon(\omega) = \epsilon'(\omega) + i\epsilon''(\omega)$ и внешнее поле может возбуждать поверхностные моды. Эти моды ассоциируются с пиками в оптическом поглощении, которые обнаруживаются на частотах, где $\epsilon'(\omega) < 0$. Конкретное их расположение в спектре, как убедимся ниже, зависит от формы частицы.

В металлических частицах поверхностные моды часто называют поверхностными плазменами. На частотной шкале они расположены ниже частоты плазменных колебаний электронов в массивном металле [11]. Если частота поверхностной моды частицы совпадает с фиксированной частотой внешнего поля, то амплитуда моды достигает максимума, тем самым резонансно увеличивая силу воздействия внешнего поля на частицу. Мода может испытывать изменение фазы на π , что ведет к мгновенному изменению направления силы.

Для иллюстрации сказанного рассмотрим несферическую металлическую частицу в вакууме в условиях, когда применимо дипольное приближение. Предполагается, что ее размеры намного меньше длины волны падающего поля излучения и применимо рэлеевское приближение. Под действием внешнего поля изолированная частица приобретает дипольный момент. Хорошо известно [11], что металлическая частица в электростатическом поле эквивалентна идеальному диполю с определенным дипольным моментом. В вычислениях ее можно заменять идеальным диполем также и в случае, когда приложенное поле является плоской волной.

Будем считать, что вдоль направления z движется плоская электромагнитная волна с частотой ω , электрическое поле которой зависит от времени. Оно вызывает дипольную поляризуемость, которую в главных осях тензора поляризуемости можно представить в виде

$$\alpha_{jj}(\omega) = \frac{V}{4\pi} \frac{\epsilon_{jj}(\omega) - 1}{1 + L_j[\epsilon_{jj}(\omega) - 1]} . \quad (1)$$

Здесь V — объем частицы, L_j — геометрический фактор, известный также как коэффициент деполяриза-

ции, $\varepsilon_{jj}(\omega)$ — диагональные компоненты тензора диэлектрической проницаемости частицы, который для металла на частотах, близких к плазменным колебаниям электронов, удобно представить в виде

$$\varepsilon_{jj}(\omega) = 1 - (\omega_p / \omega)^2 + 4\pi i \sigma_{jj}(\omega) / \omega, \quad (2)$$

где $\sigma_{jj}(\omega)$ — диагональные компоненты тензора электропроводности, величина весьма чувствительная к форме частицы (выражения для компонент этого тензора можно найти для различных условий, например, в [10]), ω_p — частота плазменных колебаний электронов в объеме. При этом вклад в проводимость дает как электрическое (электрическое поглощение), так и магнитное поле волны (магнитное поглощение). Напомним, что в случае $a \gg l$ проводимость является скалярной величиной, как и для сферических частиц.

Исходя из выражений для силы Лоренца, действующей на элементарный заряд e , легко получить суммарную силу, действующую со стороны электромагнитной волны на незаряженную металлическую частицу. Она имеет вид

$$\mathbf{F} = (\mathbf{d}\nabla)\mathbf{E} + \frac{1}{c}(\dot{\mathbf{d}} \times \mathbf{H}). \quad (3)$$

Здесь $\dot{\mathbf{d}}$ — производная по времени от дипольного момента частицы, \mathbf{E} — электрическое, а \mathbf{H} — магнитное поле волны, c — скорость света. В (3) все величины действительны. Удобно перейти к комплексным переменным по схеме $\mathbf{E} \rightarrow (\mathbf{E} + \mathbf{E}^*)/2$ (астериск означает комплексное сопряжение). Будем полагать, что комплексные величины зависят гармонически от времени

$$\mathbf{d} = \mathbf{d}_0 e^{-i\omega t}, \quad \mathbf{E} = \mathbf{E}_0 e^{-i\omega t}, \quad \mathbf{H} = \mathbf{H}_0 e^{-i\omega t}. \quad (4)$$

Зависимость от времени величин (4) обуславливает быстрые осцилляции силы (3). Интерес представляет поэтому сила (3), усредненная по периоду волны T

$$\begin{aligned} \langle \mathbf{F} \rangle &= \frac{1}{T} \int_{-T/2}^{T/2} \mathbf{F}(t) dt = \\ &= \frac{1}{4T} \int_{-T/2}^{T/2} \left\{ [(\mathbf{d} + \mathbf{d}^*)\nabla](\mathbf{E} + \mathbf{E}^*) + \frac{1}{c}(\dot{\mathbf{d}} + \dot{\mathbf{d}}^*) \times (\mathbf{H} + \mathbf{H}^*) \right\} dt. \end{aligned} \quad (5)$$

Во втором слагаемом в (5) можно провести интегрирование по частям и воспользоваться соотношением

$$-\frac{1}{c} \frac{d\mathbf{H}}{dt} = \nabla \times \mathbf{E}. \quad (6)$$

В результате вместо (5) получим

$$\begin{aligned} \langle \mathbf{F} \rangle &= \frac{1}{4T} \times \\ &\times \int_{-T/2}^{T/2} \left\{ [(\mathbf{d} + \mathbf{d}^*)\nabla](\mathbf{E} + \mathbf{E}^*) + (\mathbf{d} + \mathbf{d}^*) \times [\nabla \times (\mathbf{E} + \mathbf{E}^*)] \right\} dt. \end{aligned} \quad (7)$$

Используя явный вид временной зависимости (4), можно провести в (7) интегрирование по времени и получить в общем случае усредненную по периоду падающей волны силу, действующую на диполь с дипольным моментом \mathbf{d}_0

$$\langle \mathbf{F} \rangle = \frac{1}{4} \left\{ (\mathbf{d}_0 \nabla) \mathbf{E}_0^* + \mathbf{d}_0 \times (\nabla \times \mathbf{E}_0^*) + \text{к.с.} \right\}. \quad (8)$$

Формула (8) будет для нас исходной при расчете усредненной силы, действующей со стороны электромагнитной волны на металлическую частицу. Дипольный момент частицы, которая имеет форму эллипсоида, можно в общем виде представить следующим образом:

$$d_{0j} = \sum_{k=1}^3 \alpha_{jk} E_{0k}, \quad (9)$$

где α_{jk} — тензор поляризуемости. В главных осях эллипсоида этот тензор становится диагональным и выражается через диагональные компоненты тензора диэлектрической проницаемости частицы ε_{jj} при помощи выражения (1).

Предположим, что металл, из которого состоит частица, изотропен. Тогда действительная часть диэлектрической проницаемости — скаляр, и тензорный характер она приобретает за счет своей мнимой части [13]. К примеру, когда частица имеет несферическую форму и ее размер становится меньше длины свободного пробега электрона, оптическая проводимость в ней становится тензорной величиной [10]. Через компоненты этого тензора, в случае $a < l$, и определяется мнимая часть тензора диэлектрической проницаемости. Вопрос о том, насколько тензорный характер оптической проводимости σ_{jk} влияет на силы, действующие со стороны лазерного пучка на малую металлическую частицу, в литературе до сих пор не исследовался. Этим мы и займемся ниже.

Для иллюстрации влияния формы частицы на характер действующих на нее сил ограничимся рассмотрением частицы в виде эллипса вращения (сфера). Геометрический фактор L_j , входящий в (1), для частиц, имеющих форму вытянутого ($R_\perp < R_\parallel$) или сплюснутого ($R_\perp > R_\parallel$) сфера, где R_\parallel и R_\perp — полуоси сферы вдоль и поперек оси его вращения соответственно имеет вид [12]:

$$L_\perp = (1 - L_\parallel)/2,$$

$$L_{\parallel} = \begin{cases} \frac{1-e_s^2}{e_s^2} \left(\frac{1}{2e_s} \ln \frac{1+e_s}{1-e_s} - 1 \right), & R_{\perp} < R_{\parallel}, \\ \frac{1+e_s^2}{e_s^3} (e_s - \operatorname{arctg} e_s), & R_{\perp} > R_{\parallel}, \end{cases} \quad (10)$$

e_s — эксцентрикитет сферида.

В этом случае в главных осях сферида отличны от нуля три компоненты тензора σ , две из которых совпадают:

$$\sigma_{11} = \sigma_{22} = \sigma_{\perp}, \quad \sigma_{33} = \sigma_{\parallel}. \quad (11)$$

Поэтому в соответствии с (1), (2) в этих же осях отличными от нуля будут и три компоненты тензора поляризуемости:

$$\alpha_{11} = \alpha_{22} = \alpha_{\perp}, \quad \alpha_{33} = \alpha_{\parallel}. \quad (12)$$

Используя значения компонент тензора поляризуемости в избранной системе координат (11), можно с помощью (9) записать дипольный момент в произвольной системе координат

$$\mathbf{d} = \alpha_{\perp} \mathbf{E}_0 + (\alpha_{\parallel} - \alpha_{\perp}) (\mathbf{n} \mathbf{E}_0) \mathbf{n}, \quad (13)$$

где $\mathbf{n} = \{n_x, n_y, n_z\}$ — единичный орт, направленный вдоль оси вращения сферида. Эта запись удобна тем, что можно теперь подставить (13) в (8) и расписать компоненты силы $\langle \mathbf{F} \rangle$ в любой удобной системе координат. Такой для нас оказалась система координат с осью z , направленной вдоль лазерного пучка.

Для явного определения $\langle \mathbf{F} \rangle$ необходимо еще задаться видом координатной зависимости падающего поля $\mathbf{E}_0(\mathbf{r})$. Рассмотрим случай эллиптически поляризованной гауссовой волны с волновым вектором \mathbf{k} и частотой ω , распространяющейся вдоль z

$$\mathbf{E}_0(\mathbf{r}) = (\mathbf{E}_x + i\mathbf{E}_y) \exp\left(-(x^2 + y^2)/(2\rho_0^2)\right) \times \exp(i(kz - \omega t)) \quad (14)$$

с составляющими электрического поля \mathbf{E}_x , \mathbf{E}_y , направленными вдоль осей x , y соответственно; ρ_0 — радиус пучка. Линейно поляризованную волну получаем из (14), положив равной нулю какую-либо из компонент поля. В случае $\mathbf{E}_x = \mathbf{E}_y$ падающая волна становится циркулярно поляризованной.

Подставляя (13), (14) в (8), можно диссипативную силу, действующую на сфероидальную металлическую частицу вдоль направления падения пучка, записать в виде

$$\langle F_z \rangle = \frac{k}{2} \exp\left(-(x^2 + y^2)/\rho_0^2\right) \times \times \left\{ (\mathbf{E}_x^2 + \mathbf{E}_y^2) \operatorname{Im} \alpha_{\perp} + [(\mathbf{n} \mathbf{E}_x)^2 + (\mathbf{n} \mathbf{E}_y)^2] \operatorname{Im} (\alpha_{\parallel} - \alpha_{\perp}) \right\}, \quad (15)$$

тогда как боковые, ее консервативные компоненты, которые далее будем еще именовать латеральными компонентами, можно представить как

$$\langle F_i \rangle = -\frac{x_i}{2\rho_0^2} \exp\left(-(x^2 + y^2)/\rho_0^2\right) \times \times \left\{ (\mathbf{E}_x^2 + \mathbf{E}_y^2) \operatorname{Re} \alpha_{\perp} + [(\mathbf{n} \mathbf{E}_x)^2 + (\mathbf{n} \mathbf{E}_y)^2] \operatorname{Re} (\alpha_{\parallel} - \alpha_{\perp}) \right\}, \quad (16)$$

где $i = 1, 2$, $x_1 = x$, $x_2 = y$.

Поскольку компоненты тензора диэлектрической проницаемости для металла равны

$$\epsilon_{\parallel, \perp} = \epsilon' + i \frac{4\pi}{\omega} \sigma_{\parallel, \perp},$$

то на основании (1) нетрудно получить для действительной и мнимой частей диагональных компонент тензора поляризуемости металлического сферида следующие выражения:

$$\operatorname{Re} \alpha_{\parallel, \perp} = \frac{V}{4\pi} \frac{(\epsilon' - 1)[1 + L_{\parallel, \perp}(\epsilon' - 1)] + L_{\parallel, \perp} \left(\frac{4\pi}{\omega} \sigma_{\parallel, \perp} \right)^2}{[1 + L_{\parallel, \perp}(\epsilon' - 1)]^2 + \left(\frac{4\pi}{\omega} L_{\parallel, \perp} \sigma_{\parallel, \perp} \right)^2}, \quad (17)$$

$$\operatorname{Im} \alpha_{\parallel, \perp} = V \frac{\sigma_{\parallel, \perp} / \omega}{[1 + L_{\parallel, \perp}(\epsilon' - 1)]^2 + \left(\frac{4\pi}{\omega} L_{\parallel, \perp} \sigma_{\parallel, \perp} \right)^2}. \quad (18)$$

Для сферических частиц в поле той же волны

$$\langle F_z \rangle_{\text{sph}} = \frac{k}{2} \exp\left(-(x^2 + y^2)/\rho_0^2\right) \mathbf{E}^2 \operatorname{Im} \alpha_{\text{sph}}, \quad (19)$$

$$\langle F_i \rangle_{\text{sph}} = -\frac{x_i}{2\rho_0^2} \exp\left(-(x^2 + y^2)/\rho_0^2\right) \mathbf{E}^2 \operatorname{Re} \alpha_{\text{sph}}, \quad (20)$$

где

$$\operatorname{Re} \alpha_{\text{sph}} = R^3 \frac{(\epsilon' - 1)(\epsilon' + 2) + (4\pi\sigma/\omega)^2}{(\epsilon' + 2)^2 + (4\pi\sigma/\omega)^2}, \quad (21)$$

$$\operatorname{Im} \alpha_{\text{sph}} = R^3 \frac{12\pi\sigma/\omega}{(\epsilon' + 2)^2 + (4\pi\sigma/\omega)^2}, \quad (22)$$

$$\sigma = \frac{3}{16\pi} \left(\frac{\omega_p}{\omega} \right)^2 \frac{v_F}{R}, \quad (23)$$

R — радиус, σ — высокочастотная оптическая проводимость сферической частицы, v_F — скорость Ферми. Очевидно, выражения (17), (18), полученные для

сфероидальных частиц, переходят в соответствующие выражения (21), (22) для сферических частиц с учетом равенства $L_{\parallel} = L_{\perp} = 1/3$. При этом проводимость становится скалярной величиной, задаваемой в виде (23). На плазменной частоте действительная часть диэлектрической проницаемости стремится к нулю. Вблизи плазменных резонансов в (17), (18) и (21), (22) следует положить

$$\epsilon' = 1 - (\omega_p / \omega)^2. \quad (24)$$

Если компоненты единичного орта, входящие в (13), в сферической системе координат представить как

$$n_x = \sin \theta \cos \phi, \quad n_y = \sin \theta \sin \phi, \quad n_z = \cos \theta,$$

то произведения \mathbf{nE}_x и \mathbf{nE}_y в (15), (16) соответственно становятся:

$$\mathbf{nE}_x = E_x \sin \theta \cos \phi, \quad \mathbf{nE}_y = E_y \sin \theta \sin \phi.$$

Тогда отношение средних величин от сил давления на несферическую и сферическую частицы в направлении падения излучения, используя выражения (15) и (19), можно записать как

$$\frac{\langle F_z \rangle}{\langle F_z \rangle_{\text{sph}}} = \frac{\text{Im } \alpha_{\perp}}{\text{Im } \alpha_{\text{sph}}} + \frac{\sin^2 \theta \frac{(\mathbf{E}_x \cos \phi)^2 + (\mathbf{E}_y \sin \phi)^2}{\mathbf{E}_x^2 + \mathbf{E}_y^2} \frac{\text{Im}(\alpha_{\parallel} - \alpha_{\perp})}{\text{Im } \alpha_{\text{sph}}}}{1}. \quad (25)$$

Из (25) видно, что, в отличие от частиц сферической формы, для несферических частиц усредненные компоненты силы, действующие на них, становятся зависимыми от углов между направлением векторов компонент поля и осью вращения сфероида. К тому же эти силы зависят от формы частицы, которая в данном случае определяется геометрическим фактором L_j , входящим в выражение для диагональных компонент тензора α_{jj} . Аналогичное отношение получим и для отношения консервативных сил, если в (25) заменим мнимые части α на реальные.

3. Плазмонный резонанс

Как установлено нами в [10], в случае малых металлических частиц плазмонные резонансы также существенно зависят от формы частицы, которая для различных направлений поляризации j задается упомянутым выше геометрическим фактором L_j . Выражения (17) и (18) с учетом (24) можно привести к виду

$$\text{Re } \alpha_{\parallel, \perp} = \frac{V}{4\pi} \frac{\left(\frac{\omega_p}{\omega} \right)^2 \left[1 - \left(\frac{\omega_{\parallel, \perp}}{\omega} \right)^2 \right] + L_{\parallel, \perp} \left(\frac{4\pi}{\omega} \sigma_{\parallel, \perp} \right)^2}{\left[1 - \left(\frac{\omega_{\parallel, \perp}}{\omega} \right)^2 \right]^2 + \left(\frac{4\pi}{\omega} L_{\parallel, \perp} \sigma_{\parallel, \perp} \right)^2}, \quad (26)$$

$$\text{Im } \alpha_{\parallel, \perp} = V \frac{\frac{\sigma_{\parallel, \perp}}{\omega}}{\left[1 - \left(\frac{\omega_{\parallel, \perp}}{\omega} \right)^2 \right]^2 + \left(\frac{4\pi}{\omega} L_{\parallel, \perp} \sigma_{\parallel, \perp} \right)^2}, \quad (27)$$

где

$$\omega_{\parallel, \perp} = \sqrt{L_{\parallel, \perp}} \omega_p \quad (28)$$

представляют собой частоты плазмонных резонансов. Напомним, что здесь рассмотрен случай эллипсоида вращения (сфероида). В общем же случае произвольного эллипсоида таких поверхностных плазменных частот было бы три. Из (26) и (27) легко определить реальную и мнимую части $\alpha_{\parallel, \perp}$ в резонансе:

$$\text{Re } \alpha_{\parallel, \perp} = \frac{V}{4\pi} \frac{1}{L_{\parallel, \perp}}, \quad \text{Im } \alpha_{\parallel, \perp} = \frac{V}{(4\pi)^2} \frac{1}{L_{\parallel, \perp}^2} \frac{\omega_{\parallel, \perp}}{\sigma_{\parallel, \perp}}. \quad (29)$$

Для заданной частоты всегда можно подобрать такие геометрические формы частицы, при которых она будет испытывать на себе резонансное увеличение силы светового давления. В частности, для частиц сфероидальной формы существуют две формы сфероида, которые могут резонансно поглощать. Возьмем для примера рабочую частоту CO₂-лазера $\approx 2 \cdot 10^{14}$ с⁻¹. При концентрации электронов в частице 10²² см⁻³ $\omega_p \approx 5,6 \cdot 10^{15}$ с⁻¹. Используя (28) и (10), легко убедиться в том, что на такой частоте резонансное давление должны испытывать на себе как иглообразные, так и дискообразные частицы с отношением полуосей, приведенным в табл. 1.

Таблица 1. Связь резонансной частоты излучения ω с формой частицы, задаваемой соотношением полуосей сфероида $R_{\perp} / R_{\parallel}$.

$\omega, \text{с}^{-1}$	$R_{\perp} / R_{\parallel}$
2,0 · 10 ¹⁴ (CO ₂ -лазер)	0,019 (иглообразная ММЧ) 614,50 (дискообразная ММЧ)
2,9 · 10 ¹⁵ (Cu)	0,763 (иглообразная ММЧ) 1,64 (дискообразная ММЧ)

Справедливо и обратное утверждение: наночастица произвольной геометрической формы резонансно поглощает хотя бы одну из частот. Причем, чем выше степень симметрии частицы, тем меньше количество резонансных частот, которые она может поглощать.

Например, сферическая частица имеет одну, сфероидальную — две и эллипсоидальную — три резонансных частоты.

В работе [9] было исследовано, при каких поляризациях падающего гауссова пучка отношение сил, действующих на такую частицу, достигает максимального значения. Здесь же, положив в (25) угол $\phi = \pi/4$, исключим поляризационную зависимость и проследим, насколько изменится соотношение средних сил в зависимости от угла θ , а также от формы частицы. Для иллюстрации сказанного на рис. 1, *a* для металлической микрочастицы (ММЧ), имеющей иглообразную форму, в направлении падения излучения показана зависимость отношения силы, действующей на нее, к силе, действующей на сферическую частицу, от величины отклонения формы частицы от сферической. Рисунок 1, *b* отражает ту же зависимость для латерально направленных сил. На вставках показано изменение этих сил для частиц, форма которых далека от резонансного условия. Здесь и далее расчеты сил проведены с использованием выражения (25) и аналогичного ему, при замене $\text{Im} \rightarrow \text{Re}$ для i -х сил. Как видно на рис. 1, *a*, в направлении падения лазерного пучка сила давления излучения на иглообразную частицу (на частоте CO₂-лазера) при плазмонном резонансе может в сотни тысяч раз превышать давление, испытываемое равной по объему сферической частицей. Величина отношения сил сильно зависит от угла θ и достигает максимального значения при $\theta = \pi/2$. В латеральных направлениях (рис. 1, *b*) это превышение значительно меньше и достигает сотен раз. При этом отношение сил может принимать как положительное, так и отрицательное значение, что говорит о втягивающем или выталкивающем характере сил («радиационном ветре»), действующих на частицы резонансной формы. По модулю оно максимально при угле $\theta = \pi/2$. Из вставок на рис. 1 видим, что для сплюснутых металлических частиц (в которых $R_\perp > R_\parallel$) отношение сил при угле $\theta = \pi/2$, наоборот, — минимально, и увеличивается по мере уменьшения угла θ .

Для дискообразной частицы (с отношением $R_\perp / R_\parallel \approx 614,5$) расчет показал, что на частоте CO₂-лазера ожидаемого резонанса не возникает. Причина этого — в большом затухании при таких сплюснутостях, которое приводит к «размытию» резонанса.

С увеличением частоты падающего излучения плазмонный резонанс испытывают вытянутые частицы со все большим отношением R_\perp / R_\parallel , а сплюснутые — со все меньшим R_\perp / R_\parallel . При этом силы давления на частицу падают по абсолютной величине. На рис. 2 показаны те же зависимости, что и на рис. 1, но на частоте $\omega = 2,9 \cdot 10^{15} \text{ c}^{-1}$, близкой к плазмонным колебаниям в меди. Резонансное давление на этой частоте испытывают частицы, близкие по форме к сфе-

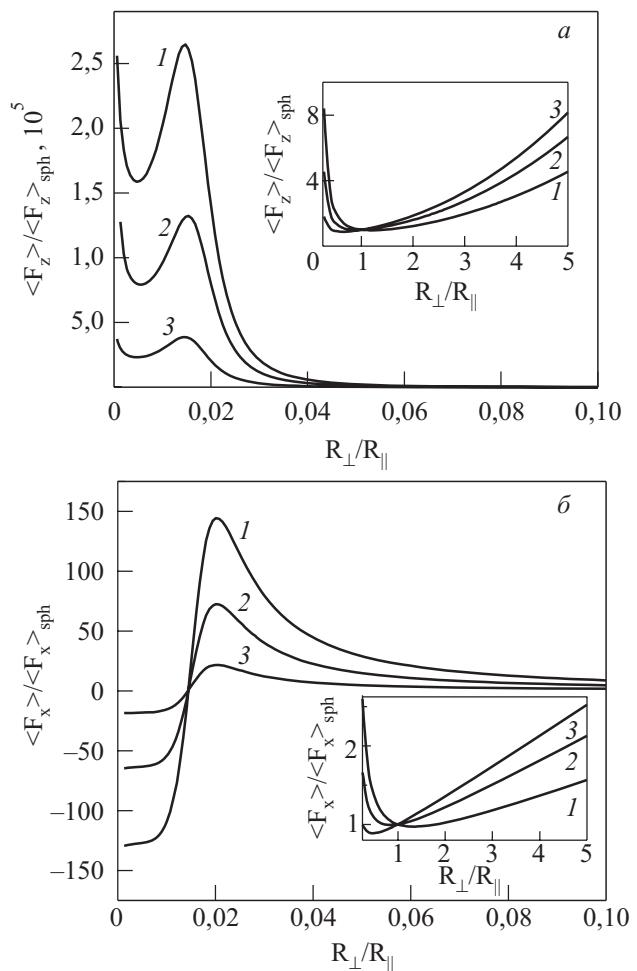


Рис. 1. Отношения силы давления излучения (с частотой $\approx 2 \cdot 10^{14} \text{ c}^{-1}$) на иглообразную частицу к силе давления на равную по объему сферическую частицу с радиусом 100 Å в зависимости от формы частицы, задаваемой отношением полуосей сфероида: в направлении падения излучения (*a*), в латеральных направлениях (*b*). Кривые построены при углах $\phi = \pi/4$ и $\theta = \pi/2$ (кривая 1), $\theta = \pi/4$ (2) и $\theta = \pi/8$ (3).

ческим. На рис. 2 видно, во-первых, насколько уменьшается прямая и боковые силы давления излучения на частицу. Во-вторых, наблюдаем (см. рис. 2, *b*) наряду с резонансом для вытянутых частиц появление в латеральных направлениях и резонанса для сплюснутых частиц, который при малых сплюснутостях не подавляется затуханием (как это было в предыдущем случае, на частоте CO₂-лазера). В направлении падения излучения вдоль оси z (рис. 2, *a*) резонансы проявляются в виде пиков, лежащих по обе стороны от сферических частиц с $R_\perp / R_\parallel = 1$. Используя равенства (28) и (10), находим, что и на новой частоте испытывают резонансное давление как вытянутые, так и сплюснутые частицы со значениями отношения R_\perp / R_\parallel , указанными во второй строке табл. 1. Следовательно, ле-

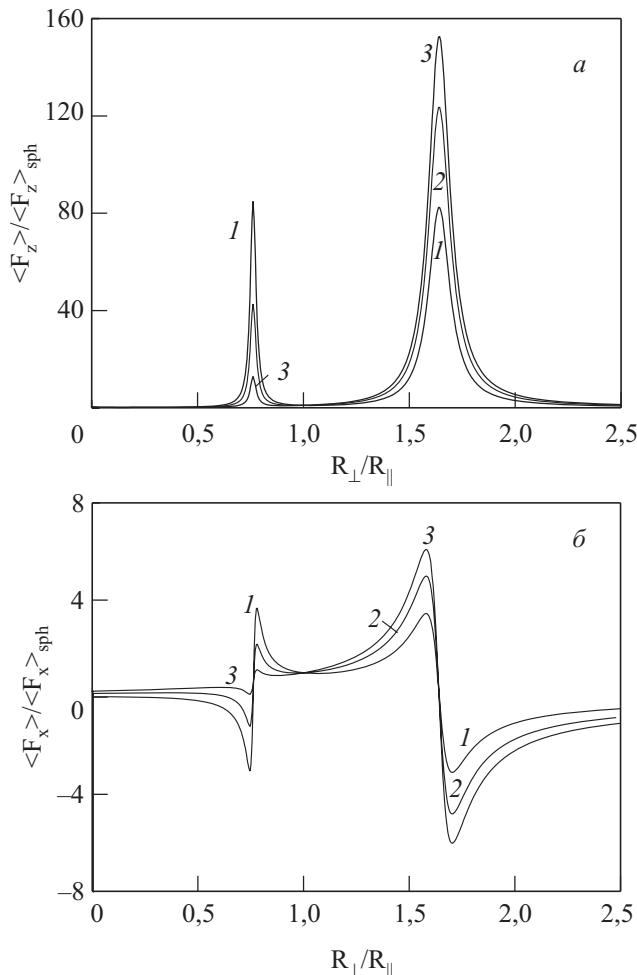


Рис. 2. Те же зависимости, что и на рис. 1, на частоте $\omega = 2.9 \cdot 10^{15} \text{ с}^{-1}$, близкой к плазмонным колебаниям в Cu.

восторонний пик (рис. 2, а) и резонанс (рис. 2, б) относятся к вытянутой частице, в то время как пик и резонанс, стоящие с правой стороны, — к сплюснутой частице. По мере уменьшения угла θ пик и резонанс у вытянутой частицы подавляются, тогда как у сплюснутой достигают максимальных значений. При заданной ориентации (т.е. фиксированных углах ϕ и θ) усиления или подавления пиков и резонансов в частицах различной формы можно достичь с помощью подбора поляризации падающего излучения [9].

С изменением формы частицы происходит смещение плазмонного пика силы давления. Чтобы выяснить характер этих смещений с изменением степени сплюснутости или вытянутости металлической частицы, на рис. 3 мы построили при фиксированных углах частотную зависимость для отношения сил давления на частицы разной формы. Слабые пики 3 и 4 на этом рисунке относятся к частицам, по форме близким к сферическим. Как видно на рис. 3, в сравнении со сферической металлической частицей, сплюснутые частицы испытывают резонансное давление в более длинноволновой (кривые 1, 2), а вытянутые — в более

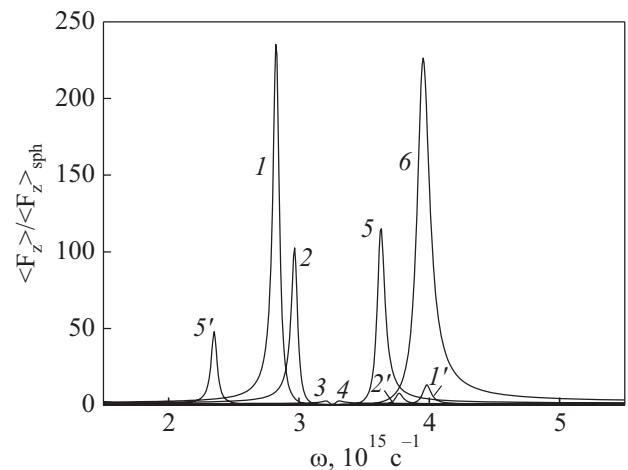


Рис. 3. Зависимость от частоты отношения силы давления излучения в направлении его падения на сфероидальную частицу к силе давления на равную по объему сферическую частицу с радиусом 100 Å, для частиц с различными $R_{\perp} / R_{\parallel}$: 1,8 (1), 1,5 (2), 1,05 (3), 0,95 (4), 0,5 (5), 0,1 (6); при углах: $\phi = \pi / 4$, $\theta = \pi / 12$.

коротковолновой (кривые 5, 6) области спектра. При этом хвосты пиков сплюснутых частиц развернуты в длинноволновую, а вытянутых — в коротковолновую часть спектра. С увеличением сплюснутости частицы (кривая 1) пик давления излучения на частицу увеличивается и смещается в длинноволновую часть спектра, тогда как увеличение вытянутости частицы (кривая 6), кроме увеличения на нее давления, ведет к смещению пика в коротковолновую часть спектра. Пики, отмеченные на рис. 3 нумерацией со штрихом, возникают вместе с соответствующими пиками без штрихов, что, как это видно из (28), обусловлено их попаданием в заданный спектр значений $R_{\perp} / R_{\parallel}$. Их интенсивность зависит от двух факторов: ориентации частицы по отношению к падающему излучению и/или поляризации излучения. В данном примере высотой штрихованных пиков можно управлять при помощи угла θ ; при $\theta \rightarrow 0$ они исчезают.

Необходимо отметить, что для вытянутых частиц рост интенсивности и смещение пика выходят с увеличением вытянутости частицы на насыщение, после которого дальнейшее увеличение вытянутости ведет к падению интенсивности давления излучения на частицу, и смещение пика не происходит. Оценки показывают, что уже при $R_{\perp} / R_{\parallel} = 1/64$ пик становится достаточно широким и его смещение малозаметно в сравнении, например, с пиком при $R_{\perp} / R_{\parallel} = 1/32$.

Полуширина плазмонного резонанса Γ_j связана с диагональными элементами тензора оптической проводимости [10] и ее можно оценить, используя соотношение

$$\Gamma_j = 2\pi L_j \sigma_{jj}. \quad (30)$$

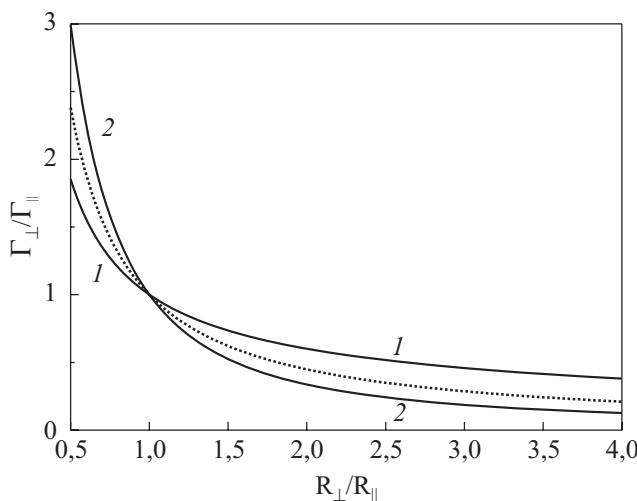


Рис. 4. Зависимость отношения поперечной и продольной полуширин плазменных резонансов от отношения между полуосами сфероида для случаев низких (кривая 1) и высоких частот (2). Зависимость отношения L_9 / L_8 от R_9 / R_8 (.....).

На рис. 4 показана зависимость отношения между поперечной Γ_9 и продольной Γ_8 компонентами полуширин плазмонного резонанса от отношения полуосей сфероида. В расчетах использованы выражения для σ_9 и σ_8 из работы [10]. Видно, что в зависимости от того, какова частота излучения (больше или меньше) в сравнении с частотой колебания электронов между стенками частицы, отношения полуширин плазмонного резонанса качественно отличаются. Для сплюснутых металлических частиц с увеличением отношения R_9 / R_8 между полуосами сфероида отношение полуширин спадает слабее на низких, чем на высоких частотах; для вытянутых же частиц увеличение отно-

шения полуширин с уменьшением отношения R_9 / R_8 происходит быстрее на высоких частотах, чем на низких.

Обнаруженное выше смещение пика характерно только при изменении формы частицы, но не ее объема. В [9] для сфероидальных частиц разной сплюснутости было продемонстрировано, что с увеличением объема частицы (при сохранении отношения между полуосами сфероида) возрастает только сила давления на частицу, однако частотное смещение пика давления не происходит. При этом отношение сил давления увеличивалось быстрее для более сплюснутых частиц. На рис. 5 для двух частиц разных сплюснутостей в зависимости от частоты показано, насколько изменится это отношение сил с изменением угла θ . Более сплюснутой частице на этом рисунке соответствуют кривые 4–6. Видно, что с уменьшением угла θ отношение сил давления растет быстрее в менее сплюснутой частице.

4. Заключение

Найдены усредненные по периоду падающей волны простые выражения для силы давления оптического излучения на сфероидальную металлическую наночастицу, связывающие их с диагональными элементами тензора проводимости частицы. Показано, что консервативная и диссипативная компоненты этой силы существенно зависят от формы частицы, а также от ее ориентации по отношению к направлению падающего излучения. Исследовано поведение сил давления вблизи плазмонных резонансов в сфероидальных частицах в зависимости от изменения формы частицы и ее ориентации. Обнаружено смещение резонансного пика сил давления в длинноволновую сторону спектра для более сплюснутых частиц и в коротковолновую — для более вытянутых ММЧ. Установлено, что величина действующих со стороны лазерного пучка сил на несферическую металлическую частицу может на порядки отличаться от аналогичных сил, действующих на сферическую металлическую частицу того же объема.

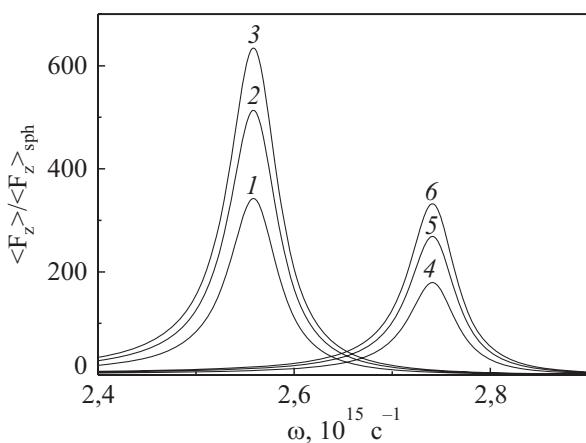


Рис. 5. Зависимость от частоты отношения силы давления излучения в направлении его падения на сфероидальную частицу разной сплюснутости к силе давления на равную по объему сферическую частицу с радиусом 100 Å при различных R_9 / R_8 : 2,0 (кривые 4–6); 2,5 (1–3) при углах $\varphi = \pi/4$; $\theta = \pi/2$ (кривые 1, 4), $\theta = \pi/4$ (2, 5), $\theta = \pi/8$ (3, 6).

1. V. Wong and M.A. Ratner, *Phys. Rev.* **B73**, 075416 (2006).
2. P.C. Chaumet, A. Rahmani, and M. Nieto-Vesperinas, *Phys. Rev.* **B71**, 045425 (2005).
3. J.R. Arias-González and M. Nieto-Vesperinas, *J. Opt. Soc. Am.* **A20**, 1201 (2003).
4. A. Ashkin, J.M. Dziedzic, and T. Yamane, *Nature* **330**, 769 (1987).
5. M.E.J. Friese, H. Rubinsztein-Dunlop, J. Gold et al., *Appl. Phys. Lett.* **78**, 547 (2001).
6. A. Ashkin, *Phys. Rev. Lett.* **24**, 156 (1970).
7. P.C. Chaumet and M. Nieto-Vesperinas, *Optics Lett.* **25**, 1065 (2000).

8. M.I. Mishchenko, J.W. Hovenier, and L.D. Travis, *Light Scattering by Nonspherical Particles: Theory, Measurements, and Applications*. Academic Press, San Diego (2000).
9. Н.И. Григорчук, П.М. Томчук, *Сб. трудов Харьковской нанотехнологической Ассамблеи (OTTON-7)*. т. 2. «Тонкие пленки в оптике и наноэлектронике», Харьков, ИПП «Контраст» (2006), с. 258.
10. P.M. Tomchuk and N.I. Grigorchuk, *Phys. Rev.* **B73**, 155423 (2006).
11. T.B. Jones, *Electromechanics of Particles*, Cambridge University Press (1995).
12. Л.Д. Ландау, Е.М. Лифшиц, *Электродинамика сплошных сред*, Наука, Москва (1982).
13. П.М. Томчук, Б.М. Томчук, *ЖЭТФ* **112**, 661 (1997).

Pressure force of radiation on a spheroidal metallic nanoparticle nearby plasmon resonance

N.I. Grigorchuk and P.M. Tomchuk

The problem of polarized light pressure on a spheroidal metallic nanoparticle is solved theoreti-

cally. Analytical formulae for this force averaged over incident wave period are derived, which allow to connect it with the tensor for conductance of the particle. It is shown that the conservative and dissipative components of this forces depend substantially on nanoparticle shape and on its orientation relative to the direction of incident light. The behaviour of the forces of radiation pressure near the plasmon resonance in the spheroidal metallic nanoparticle is studied. It is found that the frequency shift of resonance peak of radiation pressure is dependent on particle shape and independent of particle volume.

PACS: 03.50.De Classical electromagnetism, Maxwell equations;
41.20.-q Applied classical electromagnetism;
78.20.-e Optical properties of bulk materials and thin films;
78.67.Bf Nanocrystals and nanoparticles.

Key words: light pressure, polarized radiation, metallic nanoparticles, conductance tensor, plasmons, plasmon resonance.