

ГЕНЕРАЦІЯ ЗВУКУ МЕТАЛЕВИМИ НАНОКЛАСТЕРАМИ В ДІЕЛЕКТРИЧНІЙ МАТРИЦІ

П.М. ТОМЧУК,¹ М.І. ГРИГОРЧУК,² Д.В. БУТЕНКО¹

¹Інститут фізики НАН України

(Просп. Науки, 46, Київ 03680; e-mail: ptomchuk@iop.kiev.ua)

²Інститут теоретичної фізики ім. М.М. Боголюбова НАН України

(Вул. Метрологічна, 14б, Київ 03680; e-mail: ngrigor@bitp.kiev.ua)

УДК 534
©2010

Побудовано теорію фотоакустичного ефекту, зумовленого дією лазерного опромінення на металеві нанокластери, інкорпоровані в діелектричну матрицю. Поглинута кластерами енергія поширюється у вигляді тепла в діелектричній матриці і генерує в ній згідно з термодеформаційним механізмом звукові хвилі. У роботі отримано формули для акустичного сигналу і виявлено високу чутливість амплітуди звукової хвилі до форми металевих кластерів, а також таких параметрів лазерного випромінювання, як частота, поляризація, інтенсивність. Детально досліджено поведінку амплітуди звукових коливань в області збудження поверхневих плазмонів. Знайдено, що ця амплітуда при поглинанні світла дискретною металевою плівкою (системою кластерів у матриці) в області плазмонних резонансів може на кілька порядків перевищувати відповідну амплітуду при поглинанні суцільною металевою плівкою.

1. Вступ

Під час опромінення металевих нанокластерів лазерним потоком світла у кластері генеруються гарячі електрони. Наявність гарячих електронів спричиняє додатковий тиск електронного газу на поверхню кластера, а також зумовлює тепловий потік із кластера в оточуюче середовище. Якщо металевий нанокластер (МН), або система таких нанокластерів, знаходиться в діелектричній матриці, то обидва названі вище фактори (додатковий тиск і тепловий потік) можуть генерувати в матриці звук. Це буде в тому випадку, коли лазерний потік світла нестационарний (наприклад: короткий лазерний імпульс, стаціонарний лазерний потік світла, замодульований низькою частотою). Такі оптоакустичні ефекти в системі МН, розміщених у прозорій матриці (або на її поверхні), вивчали в

роботах [1, 2]. Зокрема було розглянуто термодеформаційний механізм генерації звуку в матриці замодульованим потоком тепла, який викликаний передачею енергії в діелектричну матрицю від гарячих електронів кластера. У роботі [1] також вперше було розглянуто механізм генерації звуку модульованим електронним тиском, який виникає в МН завдяки зміні електронної температури. Зміна тиску зумовлює коливання поверхні МН, а коливання поверхні, в свою чергу, генерує звук у матриці. Пізніше такий же механізм генерації звуку було запропоновано в роботі [3].

Крім акустичних коливань матриці значний інтерес викликають радіальні коливання у самому МН, оскільки періодична зміна в часі величини радіуса МН зумовлює осциляції в релаксаційній динаміці електронної температури (див., наприклад, [4]).

У роботі [5] було побудовано теорію поглинання енергії електромагнітних хвиль залежно від форми й розмірів малих металевих частинок. Було встановлено високу чутливість поглинання до форми частинки, а також до поляризації хвилі.

У даній роботі хочемо дослідити оптоакустичні ефекти, зумовлені однаковими МН, які мають сферодальну форму. Будемо вважати, що такі МН мають однакову орієнтацію. Цього можна досягти, розмістивши МН, наприклад, у рідкому кристалі. Поглинання такої системи МН залежатиме від поляризації лазерного опромінення і буде проявлятися залежністю амплітуди звукового сигналу в матриці від поляризації світла. Дослідженню таких ефектів і присвячено цю роботу.

Зауважимо ще, що подібні оптоакустичні ефекти можуть спостерігатися і у випадку, коли у ролі поглинаючих об'єктів виступають напівпровідникові кластери, інкорпоровані у прозорі розчинники [6].

2. Постановка задачі

Генерація і поширення довгохвильових акустичних коливань у діелектричній матриці описується рівнянням руху (див., наприклад, [7]):

$$\rho \frac{\partial^2}{\partial t^2} u_i = \sum_j \frac{\partial}{\partial x_j} \sigma_{ij}, \quad (1)$$

де $u_i(\mathbf{r}, t)$ – компонента вектора зміщення; ρ – густина маси матриці; σ_{ij} – компоненти тензора напружень; t – час; x_j – компоненти вектора координати \mathbf{r} . Із врахуванням температурної залежності компоненти σ_{ij} мають вигляд [7]:

$$\sigma_{ij} = K \left\{ \sum_{\alpha} u_{\alpha\alpha} - \alpha (T_l - T_0) \right\} \delta_{ij} + 2\mu \left\{ u_{ij} - \frac{1}{3} \delta_{ij} \sum_{\alpha} u_{\alpha\alpha} \right\}, \quad (2)$$

де K і μ – відповідно, модулі всебічного стиснення і зсуву; α – константа термічного розширення. Крім цього, у випадку малих деформацій тензор деформації записують як

$$u_{ij} = \frac{1}{2} \left(\frac{\partial}{\partial x_i} u_j + \frac{\partial}{\partial x_j} u_i \right). \quad (3)$$

У формулі (2) T_l – температура ґратки в даній точці; T_0 – деяка задана температура на далекій відстані від МН, за якої деформація відсутня. Якщо записати вектор зміщень \mathbf{u} у вигляді суми векторів поздовжнього \mathbf{u}_L і поперечного \mathbf{u}_T зміщень, то маємо

$$\mathbf{u} = \mathbf{u}_L + \mathbf{u}_T, \quad \nabla \times \mathbf{u}_L = 0, \quad \nabla \mathbf{u}_T = 0, \quad (4)$$

а із (1)–(3) отримаємо

$$\nabla^2 \mathbf{u}_L - \frac{1}{s_L^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \mathbf{u}_L = \frac{3K\alpha}{3K + 4\mu} \nabla T_l. \quad (5)$$

В (5)

$$s_L = \left(\frac{3K + 4\mu}{3\rho} \right)^{1/2} \quad (6)$$

– швидкість поздовжнього звуку. Подібно для поперечних акустичних хвиль знаходимо

$$\nabla^2 \mathbf{u}_T - \frac{1}{s_T^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \mathbf{u}_T = 0, \quad s_T = \sqrt{\frac{\mu}{\rho}}, \quad (7)$$

де s_T – швидкість поперечного звуку. Як бачимо, у середовищі, яке описується тільки двома модулями K і μ , градієнт температури не збуджує поперечні акустичні коливання.

Якщо ввести скалярний потенціал Ψ як

$$\mathbf{u}_L = \nabla \Psi, \quad (8)$$

то із (5) для його визначення отримаємо рівняння

$$\nabla^2 \Psi(\mathbf{r}, t) - \frac{1}{s_L^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \Psi(\mathbf{r}, t) = \frac{3K\alpha}{3K + 4\mu} [T_l(\mathbf{r}, t) - T_0]. \quad (9)$$

Частинний розв'язок цього неоднорідного рівняння має вигляд типу запізненого потенціалу [8]:

$$\Psi(\mathbf{r}, t) = \frac{1}{4\pi} \frac{3K\alpha}{3K + 4\mu} \int \frac{\delta T_l(\mathbf{r}, t - |\mathbf{r} - \mathbf{r}'|/s_L)}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|} d\mathbf{r}', \quad (10)$$

де $|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|$ – відстань від точки спостереження, в якій і шукаємо значення потенціалу, до елемента об'єму $dV' = d\mathbf{r}'$. В (10) введено позначення

$$\delta T_l(\mathbf{r}', t) = T_l(\mathbf{r}', t) - T_0. \quad (11)$$

Що стосується розв'язку відповідного до (9) однорідного рівняння, то цей розв'язок, як показано в роботі [1], описує генерацію звуку коливаннями поверхні МН. Такий механізм генерації звуку стає істотним [1] при дії коротких, але потужних лазерних імпульсів. Далі будемо розглядати ситуацію, коли на МН діє неперервний лазерний потік світла, енергія якого, що припадає на одиницю об'єму МН, замодульована низькою частотою акустичних коливань ω_{ac} :

$$I = I_0(1 + \cos \omega_{ac} t). \quad (12)$$

У ситуації, коли інтенсивність світла змінюється плавно, можна знехтувати генерацією звуку, зумовленою коливаннями поверхні МН.

3. Теплові потоки

Щоб рухатися далі, потрібно знайти розподіл температур $T(\mathbf{r}, t)$, який згідно з (9) визначає звуковий сигнал.

Розглянемо спочатку один МН, який має форму еліпсоїда обертання і знаходиться в діелектричній матриці. Нехай такий МН опромінюється потоком світла лазера.

У загальному випадку балансні рівняння для визначення електронної температури T_e кластера і температури металевої ґратки T_m можна записати у вигляді системи двох диференціальних рівнянь (див., наприклад, [9]):

$$\begin{cases} C_e(T_e) \frac{\partial T_e}{\partial t} = \text{div}(K_e \nabla T_e) - g(T_e - T_l) + Q, \\ C_l \frac{\partial T_l}{\partial t} = \text{div}(K_l \nabla T_l) - g(T_e - T_l), \end{cases} \quad (13)$$

де C_e , C_l і K_e , K_l – відповідно, питомі теплоємності і коефіцієнти теплопровідності електронів та ґратки МН; g – константа електрон-фононного енергообміну, член $g(T_e - T_l)$ характеризує енергію, яку електрони передають ґратці за одиницю часу, або яку одержує ґратка від електронів за той же час; Q – поглинута електронами в одиниці об'єму МН енергія за одиницю часу.

Крім рівнянь (13), які описують теплові процеси в МН потрібно ще виписати рівняння для температури діелектричної матриці, яка оточує МН. Це рівняння має вигляд

$$C_m \frac{\partial T_m}{\partial t} = \text{div}(K_m \nabla T_m), \quad (14)$$

C_m і T_m – теплоємність і коефіцієнт теплопровідності матриці, що оточує МН. Оскільки вважається, що електрони не виходять за межі МН (у діелектрик), то тепло в матрицю виносять тільки фонони. Тому розв'язки другого з рівнянь (13) та (14) і відповідні їм теплові потоки повинні “зшиватись” на границі МН. Для цього можна було б виписати відповідні граничні умови для цих рівнянь. Але замість розв'язку (13) та (14) і названої процедури “зшивання” можна зробити інакше. Оскільки йдеться про малі металеві острівці, розміри яких менші за довжину вільного пробігу електрона, для яких розподіл температур T_e і T_l по координатах всередині острівця не є суттєвим, то можна обмежитись знаходженням розв'язку лише одного рівняння:

$$C_m \frac{\partial T_m}{\partial t} = \text{div}(K_m \nabla T_m) + G(\mathbf{r}, t) \quad (15)$$

з функцією

$$G(\mathbf{r}, t) = \begin{cases} g(T_e - T_l), & \mathbf{r} \in V, \\ 0, & \mathbf{r} \notin V, \end{cases} \quad (16)$$

яка всередині об'єму V МН не залежить від координат, а за його межами дорівнює нулю. Рівняння (15) описує неоднорідну теплопровідність неоднорідного ізотропного тіла. Очевидно, описаний підхід є точним, коли величини C_l і K_l збігаються, відповідно, з C_m і K_m . Коли ж такий збіг відсутній, він лише наближено описуватиме процес. Проте для малих МН з майже однорідним розподілом температур T_e і T_l всередині них таке наближення цілком виправдане. Вважатимемо далі, що K_m не залежить від координат. Тоді загальний розв'язок (15) має вигляд (див., наприклад, [10, 11]):

$$T_m(\mathbf{r}, t) - T_0 = \frac{\varkappa_m}{\pi^{3/2} K_m} \int_{-\infty}^t dt' \times \int_V \frac{G(\mathbf{r}', t')}{[4\varkappa_m(t-t')]^{3/2}} \exp\left[-\frac{|\mathbf{r}-\mathbf{r}'|^2}{4\varkappa_m(t-t')}\right] d\mathbf{r}', \quad (17)$$

де $\varkappa_m/K_m = C_m$. Інтегрування в (17) по t' йде від $-\infty$, оскільки вважають, що джерело $G(t)$, яке задає початкові умови для однорідного рівняння, включається з моменту часу $t' = -\infty$, коли

$$T_m(\mathbf{r}, t)|_{t=-\infty} = T_0.$$

Для визначення явного виразу $G(\mathbf{r}, t)$ служить рівняння (13). Нагадаємо, що при $\mathbf{r} \in V$ у випадку (15) $T_l = T_m$. Знову вважатимемо, що довжина вільного пробігу електрона більша за розмір МН. Тоді в (13) можна опустити градієнт (електронна температура є сталою для усього МН). Для таких розмірів кластера із (13) одержуємо

$$g(T_e - T_l) = Q - C_e(T_e) \frac{\partial T_e}{\partial t}. \quad (18)$$

Для стаціонарного лазерного потоку світла останній член у правій частині (18) зникає. Але в нашому випадку інтенсивність лазерного потоку згідно з (12) замодульовано низькою (акустичною) частотою ω_{ac} . Тому

$$\frac{\partial T_e}{\partial t} \sim \omega_{ac} T_e. \quad (19)$$

Оскільки теплоємність електронного газу C_e (завдяки його виродженню) мала порівняно з теплоємністю ґратки, а частота ω_{ac} – низька, то легко досягнути нерівності

$$Q \gg \omega_{ac} C_e(T_e) T_e. \quad (20)$$

Вважатимемо, що нерівність (20) у нашому випадку виконується. Тоді згідно з (16) і (18)–(20) маємо

$$G = g(T_e - T) = Q(\mathbf{r}, t). \quad (21)$$

Енергію, поглинуту кластером за одиницю часу, можна записати у вигляді

$$VQ = cS_{ab}I, \quad (22)$$

де S_{ab} – поперечник поглинання кластера. Враховуючи (12) і (22), можемо записати

$$Q(\mathbf{r}, t) = Q_0(\mathbf{r})\varphi(t), \quad (23)$$

де

$$\varphi(t) = \frac{c}{V}S_{ab}I_0(1 + \cos \omega_{ac}t), \quad (24)$$

$$Q_0(\mathbf{r}) = \begin{cases} 1, & \mathbf{r} \in V, \\ 0, & \mathbf{r} \notin V. \end{cases}$$

Після підстановки в (17) виразу (23) отримаємо

$$T(\mathbf{r}, t) = T_0 + \frac{\varkappa_m}{\pi^{3/2}K_m} \int_0^\infty d\tau \frac{\varphi(t - \tau)}{(4\varkappa_m\tau)^{3/2}} \times \\ \times \int_V \exp\left[-\frac{|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|^2}{4\varkappa_m\tau}\right] d\mathbf{r}'. \quad (25)$$

Використовуючи фур'є-перетворення, із (25) будемо мати

$$T(\mathbf{r}, \omega) = \frac{\varkappa_m}{\pi^{3/2}K_m} \varphi(\omega) \int_0^\infty d\tau \frac{e^{i\omega\tau}}{(4\varkappa_m\tau)^{3/2}} \times \\ \times \int_V \exp\left[-\frac{|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|^2}{4\varkappa_m\tau}\right] d\mathbf{r}'. \quad (26)$$

Інтеграл по τ в (26) можна взяти, використавши формулу [12]:

$$\int_0^\infty \frac{dx}{x^{3/2}} e^{-q/x} e^{ibx} = \sqrt{\frac{\pi}{q}} \exp(-2\sqrt{-ibq}). \quad (27)$$

У результаті отримаємо

$$T(\mathbf{r}, \omega) = \frac{\varphi(\omega)}{4\pi K_m} \times$$

$$\times \int_V \frac{d\mathbf{r}'}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|} \exp\left[-(1-i)\sqrt{\frac{\omega}{2\varkappa_m}}|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|\right], \quad (28)$$

де враховано, що $\sqrt{-i} = \frac{\sqrt{2}}{2}(1-i)$.

Розглядатимемо нанокластери у формі еліпсоїда обертання з радіусами кривизни R_{\parallel} (вздовж) і R_{\perp} (впоперек осі обертання) і об'ємом $V = \frac{4\pi}{3}R_{\parallel}R_{\perp}^2$. На відстанях від кластера далеких, порівняно з його розмірами, тобто

$$r \gg \max\{R_{\parallel}, R_{\perp}\}, \quad (29)$$

можна наближено записати

$$|\mathbf{r} - \mathbf{r}'| \approx r - r' \cos \vartheta, \quad (30)$$

де ϑ – кут між \mathbf{r} і \mathbf{r}' . У цьому наближенні інтеграл (28) береться. Але, якщо допустити, що для низьких частот $\omega \sim \omega_{ac}$, крім (29), має місце нерівність

$$r' \sqrt{\frac{\omega}{2\varkappa_m}} \leq \sqrt{\frac{\omega}{2\varkappa_m}} \max\{R_{\parallel}, R_{\perp}\} < 1, \quad (31)$$

то вираз (28) набуває зовсім простого вигляду

$$T(\mathbf{r}, \omega) = \frac{V}{4\pi|\mathbf{r}|} \frac{\varphi(\omega)}{K_m} \exp\left[-(1-i)\sqrt{\frac{\omega}{2\varkappa_m}}|\mathbf{r}|\right]. \quad (32)$$

Із (32) і (24) бачимо, що на далеких (порівняно з розмірами МН) відстанях температура, яка генерується в діелектричній матриці, залежить від форми МН тільки через поперечник поглинання S_{ab} . Однак S_{ab} , як показано в роботі [5], залежить від форми МН дуже істотно.

4. Генерація звуку

Тепер, коли знайдено розподіл температури в діелектричній матриці, повернемося до виразу (10), який згідно з (9) описує поздовжні акустичні коливання. Перейдемо в (10) до фур'є-перетворення:

$$\Psi(\mathbf{r}, \omega) = \frac{1}{4\pi} \frac{3K\alpha}{3K + 4\mu} \int \frac{d\mathbf{r}'}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|} T(\mathbf{r}', \omega) e^{i\omega|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|/s_L}. \quad (33)$$

Підставляючи в цю формулу вираз $T(\mathbf{r}', \omega)$ із (32), отримуємо

$$\Psi(\mathbf{r}, \omega) = \frac{V}{(4\pi)^2} \frac{\varphi(\omega)}{K_m} \frac{3K\alpha}{3K + 4\mu} \times$$

$$\times \int \frac{d\mathbf{r}'}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}'||\mathbf{r}'|} e^{-(1-i)\sqrt{\omega/(2\kappa_m)}|\mathbf{r}'|} e^{i\omega|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|/s_L}. \quad (34)$$

Як бачимо з підінтегрального виразу (34), актуальна область інтегрування за \mathbf{r}' визначається співвідношенням

$$|\mathbf{r}'| \leq \sqrt{2\kappa_m/\omega} \equiv |\mathbf{r}_0|. \quad (35)$$

Тому на відстанях від МН $r > r'$ можна покласти $|\mathbf{r} - \mathbf{r}'| \approx r - r' \cos \vartheta'$, де ϑ' – кут між \mathbf{r} і \mathbf{r}' . У цьому наближенні інтеграл (34) легко береться, і отримуємо

$$\Psi(\mathbf{r}, \omega) = \frac{V \alpha \kappa_m K}{4\pi K_m \rho s_L^2} \frac{\wp(\omega)}{\omega} \frac{s_L^2 + i\kappa_m \omega}{s_L^2 + (\kappa_m \omega / s_L)^2} \times \frac{e^{i\omega|\mathbf{r}|/s_L}}{|\mathbf{r}|}. \quad (36)$$

Згідно з (24) для фур'є-компоненти $\wp(\omega)$ отримуємо

$$\wp(\omega) = 2\pi c \frac{S_{ab} I_0}{V} \left\{ \delta(\omega) + \frac{1}{2} [\delta(\omega - \omega_{ac}) + \delta(\omega + \omega_{ac})] \right\}. \quad (37)$$

Підставляючи вираз (37) у (36) і здійснюючи оберне перетворення Фур'є, будемо мати

$$\Psi(\mathbf{r}, t) = \frac{c I_0 \alpha \kappa_m K}{4\pi \omega_{ac} K_m \rho s_L^2} \frac{S_{ab}}{\sqrt{1 + (\kappa_m \omega_{ac} / s_L^2)^2}} \times \frac{\cos[\omega_{ac}(t - |\mathbf{r}|/s_L) - \delta]}{|\mathbf{r}|}, \quad (38)$$

де фаза δ визначається співвідношенням

$$\delta = \kappa_m \omega_{ac} / s_L^2.$$

У (38) опущено перший член з $\delta(\omega)$, оскільки він не має відношення до генерації звуку. Як бачимо, на далекій відстані (порівняно з розмірами МН) МН асиметричної форми генерує сферичну акустичну хвилю. Асиметрія поглинаючого лазерне опромінювання МН впливає (і дуже істотно) лише на амплітуду акустичної хвилі. Такий вплив форми МН на акустичний ефект особливо рельєфно проявляється, коли маємо справу з системою МН однакової форми, розміру й орієнтації. У випадку системи МН в діелектричній матриці замість (38) маємо

$$\Psi(\mathbf{r}, t) = \frac{c K I_0}{4\pi \rho s_L^2 \omega_{ac}} \frac{\alpha}{\sqrt{1 + (\kappa_m \omega_{ac} / s_L^2)^2}} \times$$

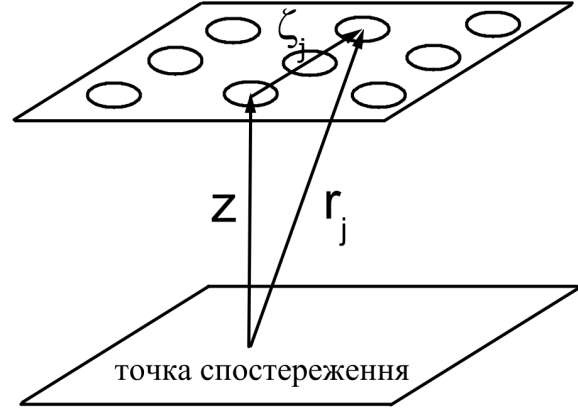


Рис. 1. Схема розташування точки спостереження і площини металевих сфероїдальних кластерів

$$\times \sum_j \frac{\kappa_m S_{ab}^{(j)}}{K_m} \frac{\cos[\omega_{ac}(t - |\mathbf{r} - \mathbf{r}_j|/s_L) - \delta]}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}_j|}. \quad (39)$$

Вираз (39) записано для загального випадку, коли поперечник поглинання різних МН $S_{ab}^{(j)}$ та їх коефіцієнти тепло- і температуропровідності різні.

5. Система однакових нанокластерів

Розглянемо систему однакової форми і розміру МН, розміщених в одній площині в матриці (див. рис. 1). На відстані, далекій у порівнянні з відстанню між МН, форма акустичного сигналу слабо залежить від конкретного розташування МН у площині, але сильно залежить від їх орієнтації.

Вважаємо, що маємо справу з однаковими МН сфероїдальної форми. Тому для спрощення розрахунків припустимо, що центри мас МН знаходяться на квадратній ґратці (зі сталою ґратки a), а їх осі обертання паралельні між собою. При такому припущенні значення вектора \mathbf{r}_j у формулі (39) можна записати у вигляді $\mathbf{r}_j = (n_j a, m_j a, 0)$, де n_j і m_j – цілі числа. Тоді суму за j в (39) у полярній системі координат можна наближено замінити інтегралом

$$\begin{aligned} \sum_j \frac{\cos[\omega_{ac}(t - |\mathbf{r} - \mathbf{r}_j|/s_L) - \delta]}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}_j|} &\approx \\ &\approx \frac{2\pi}{a^2} \int_0^\infty \frac{\cos[\omega_{ac}(t - \sqrt{z^2 + \zeta^2}/s_L) - \delta]}{\sqrt{z^2 + \zeta^2}} \zeta d\zeta = \\ &= \frac{2\pi}{a^2} \int_z^\infty \cos\left[\omega_{ac}\left(t - \frac{\xi}{s_L}\right) - \delta\right] d\xi = \end{aligned}$$

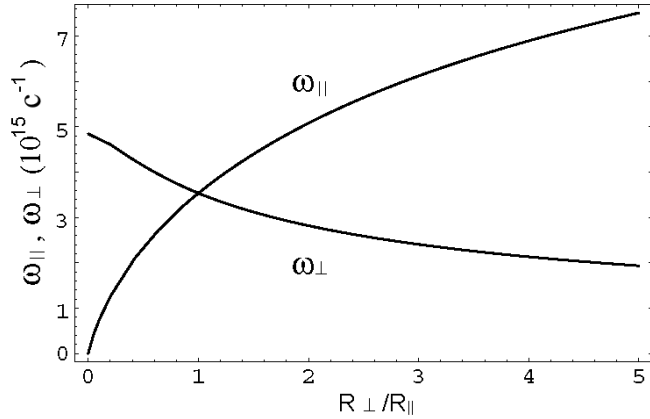


Рис. 2. Залежність частот $\omega_{||}$ і ω_{\perp} дипольних плазмонних коливань електронів, відповідно, вздовж (суцільна крива) і впоперек (штрихова крива) осі обертання сфероїда від міри сплюсненості чи витягнутості золотого сфероїдального нанокластера

$$= \frac{2\pi}{a^2} \frac{s_L}{\omega_{ac}} \sin \left[\omega_{ac} \left(t - \frac{z}{s_L} \right) - \delta \right]. \quad (40)$$

Вище враховано, що $|\mathbf{r} - \mathbf{r}_j| = \sqrt{z^2 + \zeta^2}$, і зроблено заміну змінних $\xi = \sqrt{z^2 + \zeta^2}$. Для уникнення можливих непорозумінь, зауважимо, що інтеграл (40) не має точного значення на верхній межі. Цю невизначеність можна ліквідувати, враховуючи ефект згасання звуку на далекій відстані від джерела (формально це можна зробити, додаючи уявний доданок до швидкості звуку s_l). Якщо підставити останній вираз (40) в (39) і ввести поверхневу густину МН $N_0 = 1/a^2$, то отримаємо

$$\Psi(\mathbf{r}, t) = \frac{1}{2} \frac{K I_0}{\rho s_L^2} \frac{\alpha \varkappa_m c s_L}{K_m \omega_{ac}^2} \frac{N_0 S_{ab}}{\sqrt{1 + (\varkappa_m \omega_{ac} / s_L^2)^2}} \times \sin \left[\omega_{ac} \left(t - \frac{z}{s_L} \right) - \delta \right]. \quad (41)$$

Формула (41) має подібний вигляд, як акустична хвиля у випадку суцільної плівки, що поглинає світло [11]. Проте механізм поглинання світла, який у (41) задається величиною $S_{ab} N_0$, буде анізотропним і складним чином залежить від частоти світла лазера. Відповідно, для амплітуди z -ї компоненти вектора синусоїдального зміщення згідно з (40) і (8) знаходимо

$$A_{zL} = -\frac{1}{2} \frac{c}{\omega_{ac}} \frac{\alpha \varkappa_m K I_0}{K_m \rho s_L^2} \frac{N_0 S_{ab}}{\sqrt{1 + (\varkappa_m \omega_{ac} / s_L^2)^2}}. \quad (42)$$

Із виразу (42) випливає, що акустичні хвилі з меншими частотами ω_{ac} викликають все більші амплітуди зміщення.

У роботі [5] отримано вираз (див. вираз (83) цієї роботи) для енергії, яку поглинає МН сфероїдальної форми за одиницю часу при опроміненні її монохроматичною електромагнітною хвилею, частота якої ω :

$$W \equiv VQ = \frac{V}{2} \sum_{j=1}^3 \frac{\sigma_{jj} (\varepsilon_m \omega^2 / g_j)^2 |E_j^{(0)}|^2}{(\omega^2 - \omega_j^2)^2 + (4\pi L_j \sigma_{jj} / g_j)^2 \omega^2}. \quad (43)$$

В (42) σ_{jj} – відповідна діагональна компонента тензора високочастотної провідності; ε_m – діелектрична проникність матриці; L_j – фактор деполяризації. Крім того,

$$\omega_j^2 = \frac{L_j}{g_j} \omega_{pl}^2 \quad (44)$$

– квадрат частоти плазмонного резонансу; ω_{pl} – частота плазмових коливань електронів,

$$g_j = \varepsilon_m + L_j(1 - \varepsilon_m). \quad (45)$$

Для середовищ з $\varepsilon_m = 1$, очевидно, $g_j = 1$. В (43) $E_j^{(0)}$ – j -та компонента амплітуди електромагнітної хвилі, яка в [5] приймалася у вигляді

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = \mathbf{E}^{(0)} e^{i(\mathbf{kr} - \omega t)}, \quad (46)$$

де \mathbf{k} – хвильовий вектор. Формула (43) записана в загальному випадку для трьохосового еліпсоїда. У цьому випадку МН характеризується трьома плазмонними резонансами на частотах ω_j ($j = 1, 2, 3$).

Далі, щоб дослідити роль анізотропії МН на процес генерації звуку, розглянемо найпростіший випадок, а саме: МН має сфероїдальну форму. Вісь обертання позначимо через z . Тоді маємо: $\sigma_{xx} = \sigma_{yy} \equiv \sigma_{\perp}$; $\sigma_{zz} = \sigma_{||}$; $L_x = L_y \equiv L_{\perp}$; $L_z = L_{||}$; $g_x = g_y \equiv g_{\perp}$; $g_z = g_{||}$. Крім того, $\omega_x = \omega_y \equiv \omega_{\perp}$; $\omega_z = \omega_{||}$. Графічну залежність цих частот від ступеня сплюснутості чи видовженості МН, поміщеного у скляну матрицю з $\varepsilon_m = 7$, подано на рис. 2. Вирази для факторів деполяризації $L_{||}$ і L_{\perp} , що входять в (44), можна знайти, наприклад, у роботі [5].

Якщо використати виписані вище позначення і врахувати, що

$$W = S_{ab} \left(\frac{c}{8\pi} \sqrt{\varepsilon_m} |\mathbf{E}^{(0)}|^2 \right), \quad (47)$$

із (43) для поперечника поглинання S_{ab} отримаємо вираз

$$S_{ab} = 4\pi V \frac{\varepsilon_m^{3/2}}{c} \omega^4 \left\{ \frac{(\sigma_{||} / g_{||}^2) \cos^2 \theta}{(\omega^2 - \omega_{||}^2)^2 + (4\pi L_{||} \sigma_{||} / g_{||})^2 \omega^2} + \right.$$

$$+ \frac{(\sigma_{\perp}/g_{\perp}^2) \sin^2 \theta}{(\omega^2 - \omega_{\perp}^2)^2 + (4\pi L_{\perp} \sigma_{\perp}/g_{\perp})^2 \omega^2} \Big\}, \quad (48)$$

в якому V – об’єм МН; θ – кут між віссю обертання сфероїда і ортом поляризації електромагнітної хвилі, а компоненти тензора провідності на частотах $\omega \gg \nu$ (ν – частота електронних зіткнень) є такими:

$$\sigma_{(\parallel)}(\omega) = \frac{9}{32\pi} \left(\frac{\omega_{\text{pl}}}{\omega}\right)^2 \frac{v_F}{R_{\perp}} \begin{pmatrix} \eta(e_s) \\ \rho(e_s) \end{pmatrix}, \quad (49)$$

де залежні від ексцентриситету сфероїда e_s функції $\eta(e_s)$ і $\rho(e_s)$ можна знайти у явному аналітичному вигляді, наприклад, у роботі [5]. Для МН сферичної форми $\eta(0) = \rho(0) \equiv 2/3$. Подібний до (48) вираз добре описує також поглинання енергії металевою частинкою у випадку, коли ширина падаючих лазерних імпульсів є великою [13].

Формула (48) визначає як частоту, так і поляризаційну залежність поглинання. Фактори деполіризації L_{\parallel} і L_{\perp} визначають залежність поглинання від форми МН. Вони ж, згідно з (44), визначають також положення плазмових резонансів. Для сферичного МН $L_{\parallel} = L_{\perp} \equiv 1/3$.

6. Обговорення результатів

Використовуючи (43), тим самим вважаємо, що основний внесок у переріз поглинання дають плазмові резонанси. Півширина цих резонансів для поляризацій вздовж і впоперек осі обертання сфероїда визначається виразом

$$\gamma_{(\parallel)}(\omega) = 2\pi L_{(\parallel)} \sigma_{(\parallel)}(\omega). \quad (50)$$

Вона є важливою фізичною характеристикою, оскільки відображає тип взаємодій у системі.

Вище отримано вираз (41) для скалярного потенціалу, який згідно з (8) визначає акустичне зміщення. При цьому вважали, що лазерне опромінення поглинається системою однакових сфероїдальних МН, осі обертання яких паралельні між собою і лежать в одній площині. Тепловий потік від цих МН генерує в діелектричній матриці звук. Якби замість системи МН на поверхні діелектричної матриці знаходилась суцільна металева плівка, яка поглинає лазерне опромінення, то отримали б для скалярного потенціалу Ψ подібний до (41) вираз, з такою заміною. Замість добутку $N_0 S_{\text{ab}}$, який визначає долю лазерного потоку світла, поглинутого МН, входила б величина, що відповідає поглинанню суцільної плівки. За визначенням доля енергії, яку поглинає суцільна металева

плівка за умови дуже низького пропускання нею світла, дорівнює

$$\eta \approx \frac{I - I_R}{I} = 1 - R, \quad (51)$$

де I_R – інтенсивність відбитого лазерного потоку; R – доля енергії відбитого випромінювання. Вираз (51) вимагає також припущення, що товщина плівки перевищує глибину скін-шару. Інакше доля поглинутої енергії була б дещо вищою.

Як відомо, при нормальному падінні світла з вакууму

$$R = \frac{(n - 1)^2 + \kappa^2}{(n + 1)^2 + \kappa^2}, \quad (52)$$

де n і κ визначаються зі співвідношення

$$\sqrt{\epsilon(\omega)} = n + i\kappa, \quad (53)$$

а діелектрична проникність для металу має вигляд

$$\epsilon(\omega) = \epsilon'(\omega) + i\epsilon''(\omega) \simeq 1 - \left(\frac{\omega_{\text{pl}}}{\omega}\right)^2 + i\frac{\nu}{\omega} \left(\frac{\omega_{\text{pl}}}{\omega}\right)^2. \quad (54)$$

У формулі (54) ν – частота електрон-фононних зіткнень. При цьому вважалося, що частота ω лежить в інтервалі

$$\nu < \omega < \omega_{\text{pl}}. \quad (55)$$

Якщо використати формули (51)–(54), нерівність (55) та припущення, що¹ $\kappa \gg n$, то для випадку суцільної металевої плівки отримуємо для величини η вираз

$$\eta \approx 2 \frac{\nu}{\omega_{\text{pl}}}. \quad (56)$$

Оцінка для плівки, наприклад, із золота при $T = 300$ К дає $\eta \approx 0,006$.

Таким чином, для випадку суцільної металевої плівки на поверхні діелектричної матриці отримали б для Ψ вираз (41), у якому замість $N_0 S_{\text{ab}}$ входив би вираз $2\nu/\omega_{\text{pl}}$. У зв’язку зі сказаним доцільно амплітуду акустичного коливання (42) нормувати на аналогічну амплітуду, характерну для суцільної металевої плівки A_{film} . Відношення цих амплітуд буде таким:

$$A = \frac{A_z L}{A_{\text{film}}} = \frac{\omega_{\text{pl}}}{2\nu} N_0 S_{\text{ab}}. \quad (57)$$

¹ Наприклад, для золота $n = 0,26$, $\kappa = 2,16$ [14].

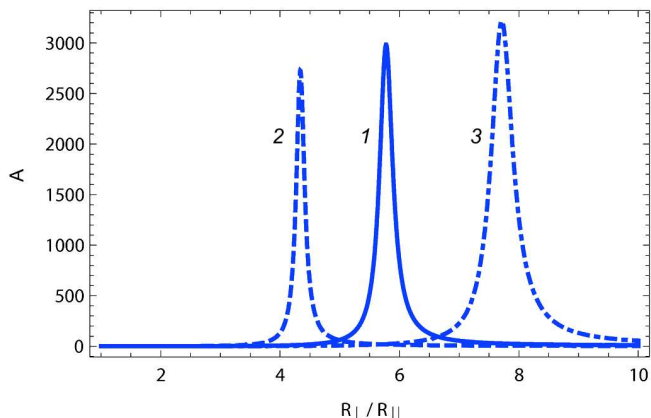


Рис. 3. Залежність амплітуди звукових коливань матриці від ступеня сплюсненості чи витягнутості сфероїдального МН з об'ємом, що дорівнює об'єму сфери, з радіусом $R = \sqrt[3]{R_{\perp}^2 R_{\parallel}} = 200 \text{ \AA}$ на частотах плазмонного резонансу $\Omega - 0, 1\Omega$ (штрихова крива), Ω (суцільна крива), $\Omega + 0, 1\Omega$ (штрих-пунктирна крива) та при куті падіння лазерного променя $\theta = \pi/4$

На рис. 3 при $\theta = \pi/4$ зображено залежність відношення звукових амплітуд (57) від міри сплюснутості чи витягнутості сфероїдального МН як на частоті плазмонного резонансу $\omega = \omega_{p1}/\sqrt{3} \equiv \Omega$, характерній для частинки сферичної форми, так і на двох інших частотах, які ненабагато вищі або нижчі за Ω . Тут і далі обчислення (57) проведено із використанням формул (42), (48) для золотої частинки у скляній матриці ($\epsilon_m = 7$) та таких значеннях параметрів: $\nu \simeq 3,39 \cdot 10^{13} \text{ c}^{-1}$ [14] $n_e \simeq 5,9 \cdot 10^{22} \text{ см}^{-3}$ [15], $a = 2000 \text{ \AA}$. Інші параметри обчислювали за формулами

$$\omega_{p1} = \sqrt{4\pi n_e e^2 / m}, \quad \nu_F = \frac{2\pi\hbar}{m} \left(n_e \frac{3}{8\pi} \right)^{1/3}, \quad (58)$$

де e і m , відповідно, заряд і маса електрона, n_e – їх концентрація.

Крива 1 відповідає плазмонному резонансу, що виникає в МН сферичної форми, поміщеній у середовище з діелектричною проникністю ϵ_m . Для матеріалів матриці з меншими діелектричними сталими резонанс зміщується в бік менших співвідношень R_{\perp}/R_{\parallel} і для $\epsilon_m \rightarrow 1$, розташований при $R_{\perp}/R_{\parallel} = 1$. Найбільший звуковий сигнал, очевидно, досягається на плазмонних частотах. Як уже встановлено в наших попередніх дослідженнях, форма МН тісно пов'язана з частотами, на яких він резонансно поглинає [16]. Частотам $\omega < \Omega$ (крива 2) відповідають (бачимо з рис. 2) плазмонні коливання електронів впоперек, а частотам $\omega > \Omega$ (крива 3) – вздовж осі сфероїда. По-

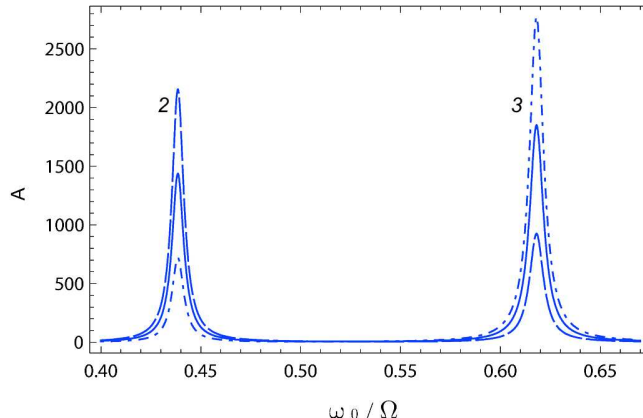


Рис. 4. Залежність амплітуди звукових коливань матриці від частоти лазерної хвилі для різних кутів θ її падіння на сплюснений МН ($R_{\perp}/R_{\parallel} = 1, 5$): $\pi/4$ (суцільна крива); $\pi/3$ (штрихова крива) та $\pi/6$ (штрих-пунктирна крива). Об'єм сфероїдального МН відповідає об'єму сфери з радіусом $R = 200 \text{ \AA}$. Відстань між МН $a = 2000 \text{ \AA}$

рівнюючи криві 1–3 між собою, знаходимо, що для більш сплюснутих МН характерні резонансні частоти зміщуються в короткохвильовий бік спектра. При цьому півширина резонансної кривої зростає пропорційно до відношення R_{\perp}/R_{\parallel} .

Якщо вибрати МН певної форми (сплюснутий чи витягнутий) і змінювати величину несучої частоти лазера, то за допомогою наших формул (42), (48) можна встановити таке. У МН сплюсненої сфероїдальної форми (рис. 4) виникають дві звукові амплітуди (дублет) відповідно до двох плазмонних резонансів, що мають місце для МН такої форми. Відносно висотою піків у дублеті можна керувати, змінюючи кут падіння електричного поля.

Виберемо спочатку кут падіння електричного поля відносно осі обертання сфероїда рівним $\theta = \pi/4$, тобто таким, за якого в однаковій мірі можна збуджувати плазмонні (дипольні) коливання електронів як впоперек, так і вздовж осі обертання сфероїда. При цьому бачимо (крива 1), що менш інтенсивний максимум, що знаходиться з боку менших частот, відповідає плазмонному резонансу, який виникає в сфероїдальному МН на частоті ω_{\perp} – впоперек осі обертання сфероїда, а більш високочастотний і більш інтенсивний максимум відповідає плазмонному резонансу на частоті ω_{\parallel} – вздовж осі обертання сфероїда. Для МН витягнутої форми – навпаки: менш інтенсивний максимум був би високочастотним і відповідав би частоті ω_{\perp} . Різна інтенсивність піків зумовлена відповідною частотною залежністю факторів деполаризації,

які входять у (48). При збільшенні кута падіння від $\pi/4$ до $\pi/3$ (крива 2) відбувається збільшення інтенсивності піка амплітуди звуку на частоті ω_{\perp} та його зменшення – на частоті ω_{\parallel} . І навпаки: при зменшенні кута падіння від $\pi/4$ до $\pi/6$ (крива 3) відбувається зменшення інтенсивності піка амплітуди звуку на частоті ω_{\perp} та його збільшення – на частоті ω_{\parallel} . Очевидно, що при куті $\theta = 0^{\circ}$, відповідно до (48), пік на частоті ω_{\perp} зникає, а інтенсивність піка на частоті ω_{\parallel} стає максимальною. Протилежне маємо: при куті $\pi/2$ зникає пік на частоті ω_{\parallel} і максимальним залишається на частоті ω_{\perp} .

На завершення важливо підкреслити, що при вибраних вище значеннях розмірів МН та відстанях між ними вся їх сукупність покриває лише 3% площини, в якій розташовані центри мас МН. І при цьому амплітуда згенерованих МН звукових хвиль на декілька порядків (у нашому прикладі на три порядки) перевищує амплітуду хвиль, які можуть виникати за тих самих умов у суцільній металевій плівці на поверхні діелектричної матриці. Така значна відмінність між оптикоакустичними властивостями дискретної (острівкової) металеві плівки та суцільної металеві плівки пов'язана з тим, що в діапазоні частот плазмонних резонансів поглинання світла дискретними плівками досягає максимального значення, у той час як для суцільної металеві плівки цей діапазон частот відповідає області майже повного відбивання світла.

7. Висновки

Розвинуто теорію акустооптичних явищ для металевих нанокластерів, інкорпорованих у діелектричну матрицю, яка дозволяє при різних поляризаціях падаючого електричного поля визначити амплітуду звукових коливань матриці. Одержані аналітичні формули дають можливість оцінити теплові потоки між МН і матрицею, визначити температуру матриці в довільний момент часу і на довільній відстані від МН та знайти величину акустичного сигналу залежно від пружних констант середовища, інтенсивності лазерного променя та перерізу поглинання МН.

Детально досліджено випадок, коли частота лазерної хвилі близька до плазмонних частот сфероїдального МН. Одержано залежність амплітуди звукових коливань матриці від ступеня сплюсненості чи витягнутості металевого сфероїдального кластера на частотах плазмонного резонансу.

Залежно від частоти хвилі лазера, амплітуда звукової хвилі у сфероїдальних МН має два максимуми різної інтенсивності на відміну від сферичних МН,

де є тільки один максимум. Це зумовлено резонансами, що виникають при збудженні лазером на частотах коливань плазмона вздовж і впоперек осі обертання сфероїда. За відстанню між піками дублета можна оцінити міру витягнутості або сплюснутості МН. Інтенсивністю піків дублета можна керувати, змінюючи кут падіння лазерного променя відносно осі обертання сфероїда.

Виявлено значну відмінність оптикоакустичних властивостей дискретної та суцільної металевих плівок на поверхні прозорої діелектричної матриці в області плазмонних резонансів.

Роботу виконано за часткової фінансової підтримки НАН України (проект ВЦ/138).

1. П.М. Томчук, УФЖ **38**, 1174 (1993).
2. І.В. Блонський, Є.А. Єлисеєв, П.М. Томчук, УФЖ **45**, 1110 (2000).
3. M. Perner, S. Gresillon, J. Marz, G. von Plessen, and J. Feldmann, *et al.* Phys. Rev. Lett. **85**, 792 (2000).
4. G.V. Hartland, J. Chem. Phys. **57**, 403 (2006).
5. P.M. Tomchuk and N.I. Grigorchuk, Phys. Rev. B **73**, 155423 (2006).
6. И.В. Блонский, М.С. Бродин, Ю.П. Пирятинский, Г.М. Тельбиз, В.А. Тхорик, П.М. Томчук, А. Г. Филин, ЖЭТФ **107**, 1685 (1995).
7. Л.Д. Ландау, Е.М. Лифшиц, *Теория упругости* (Наука, Москва, 1965).
8. Н.С. Кошляков, Э.Б. Глинер, М.М. Смирнов, *Основные дифференциальные уравнения математической физики* (Госизд. физ.-мат. л-ры, Москва, 1962).
9. R.D. Fedorovich, A.G. Naumovets, and P.M. Tomchuk, Phys. Rep. **328**, 73, (2000).
10. Ю.К. Даниленко, А.А. Маненков, В.С. Нечитайло, Труды Физического Института им. П.Н. Лебедева, **101**, 31 (1978).
11. Л.Д. Ландау, Е.М. Лифшиц, *Гидродинамика* (Наука, Москва, 1986).
12. А.П. Прудников, Ю.А. Брычков, О.И. Маричев, *Интегралы и ряды. Элементарные функции* (Наука, Москва, 1981).
13. Н.И. Григорчук, П.М. Томчук, ФНТ **34**, 576 (2008).
14. N.I. Grigorchuk and P.M. Tomchuk, Phys. Rev. B **80**, 155456 (2009).
15. Ч. Киттель, *Введение в физику твердого тела* (Наука, Москва, 1978).
16. П.М. Томчук, М.І. Григорчук, УФЖ **52**, 889 (2007).

Одержано 16.07.09

ГЕНЕРАЦИЯ ЗВУКА МЕТАЛЛИЧЕСКИМИ
НАНОКЛАСТЕРАМИ В ДИЭЛЕКТРИЧЕСКОЙ МАТРИЦЕ

П.М. Томчук, Н.И. Григорчук, Д.В. Бутенко

Р е з ю м е

Построена теория фотоакустического эффекта, обусловленного действием лазерного излучения на металлические нанокластеры, инкорпорированные в диэлектрическую матрицу. Поглощенная кластерами энергия распространяется в виде тепла в диэлектрической матрице и генерирует в ней в соответствии с термодформационным механизмом звуковые волны. В работе получены формулы для акустического сигнала и обнаружено высокую чувствительность амплитуды звуковой волны к форме металлических кластеров, а также таким параметрам лазерного излучения, как частота, поляризация, интенсивность. Детально исследовано поведение амплитуды звуковых колебаний в области возбуждения поверхностных плазмонов. Найдено, что эта амплитуда при поглощении света дискретной металлической пленкой (системой кластеров в матрице) в области плазмонных резонансов может на несколько порядков превышать соответствующую амплитуду при поглощении сплошной металлической пленкой.

GENERATION OF SOUND BY METAL NANOCCLUSERS
IN A DIELECTRIC MATRIX

P.M. Tomchuk¹, N.I. Grigorchuk², D.V. Butenko¹

¹Institute for Physics, Nat. Acad. of Sci. of Ukraine
(46, Nauky Ave., Kyiv 03680, Ukraine;
e-mail: ptomchuk@iop.kiev.ua),

²Bogolyubov Institute for Theoretical Physics,
Nat. Acad. Sci. of Ukraine
(14b, Metrolohichna Str., Kyiv 03680, Ukraine;
e-mail: ngrigor@bitp.kiev.ua)

S u m m a r y

We develop the theory of the photo-acoustical effect caused by a laser action on metal nanoclusters embedded in a dielectric matrix. The energy absorbed by clusters propagates through the dielectric matrix and generates sound waves in it by the thermodeformation mechanism. The formulas for an acoustical signal are derived, and the high sensitivity of the sound wave amplitude to the shape of metal clusters, as well to such parameters of a laser irradiation as the frequency, polarization, and intensity, is revealed. The behavior of the amplitude of sound vibrations in a region of the absorption of surface plasmons is studied in detail. It is found that this amplitude at the light absorption by a discrete metal film (a system of clusters in the matrix) can exceed the corresponding amplitude for the absorption by a continuous metal film in the region of plasmon resonances by several orders of magnitude.