

МОСКОВСКИЙ ГОСУДАРСТВЕННЫЙ УНИВЕРСИТЕТ
имени М. В. ЛОМОНОСОВА

На правах рукописи

Лопушенко Иван Владимирович

**Разработка и реализация новых математических
моделей нанооптики и плазмоники на основе метода
дискретных источников**

Специальность 05.13.18 —
«Математическое моделирование, численные методы и комплексы
программ»

АВТОРЕФЕРАТ
диссертации на соискание ученой степени
кандидата физико-математических наук

Москва — 2019

Работа выполнена на кафедре математики физического факультета МГУ им. М. В. Ломоносова.

Научный руководитель: **Свешников Алексей Георгиевич**
доктор физико-математических наук, профессор

Официальные оппоненты: **Ильинский Анатолий Серафимович**,
доктор физико-математических наук,
кафедра математической физики факультета
вычислительной математики и кибернетики
МГУ им. М. В. Ломоносова,
профессор

Тимошенко Виктор Юрьевич,
доктор физико-математических наук,
кафедра физики низких температур и сверх-
проводимости физического факультета МГУ
им. М. В. Ломоносова,
профессор

Скобелев Сергей Петрович,
доктор физико-математических наук,
публичное акционерное общество «Радиофизика»,
ведущий научный сотрудник

Защита состоится «11» декабря 2019 г. в 15 часов 00 минут на заседании диссертационного совета МГУ.01.09 Московского государственного университета им. М. В. Ломоносова по адресу: 119991, Москва, Ленинские горы, д.1, строение 52, факультет ВМК, комната 685. E-mail: ilgova@cs.msu.su

С диссертацией можно ознакомиться в отделе диссертаций научной библиотеки МГУ имени М. В. Ломоносова (Ломоносовский просп., д.27) и на сайте ИАС «Истина»: <http://istina.msu.ru/dissertations/237724945>.

Автореферат разослан «__» _____ 2019 г.
Телефон для справок: +7 (495) 939-50-71.

Ученый секретарь
диссертационного совета
МГУ.01.09,
д-р физ.-мат. наук

Е. В. Захаров

Общая характеристика работы

Актуальность темы. В настоящее время наблюдается растущий интерес к прикладным задачам наноплазмоники, предметом которой являются уникальные оптические свойства частиц и наноструктур из металлических и полупроводниковых материалов, обусловленные колебаниями электронов проводимости относительно кристаллической решетки. Присутствие таких структур в среде дает возможность преодолеть дифракционный предел Аббе и получать интенсивные локализованные электромагнитные поля, напрямую зависящие от геометрии наноструктуры или формы наночастицы, благодаря эффекту плазмонного резонанса (ПР)^{1,2}. С учетом современных возможностей синтеза наночастиц это обстоятельство приводит к практически полному контролю над их спектрами, что в свою очередь позволяет разрабатывать инновационные устройства на основе взаимодействия плазмонных структур с электромагнитными волнами и между собой. Среди таких устройств – сверхразрешающие микроскопы, биосенсоры, нанолазер и гиперлинза. Отметим, что особый интерес в последнее время вызывают свойства таких наноструктур, характерные размеры которых не превышают 10 нм – как в силу устойчивой тенденции к миниатюризации оптоэлектронных и фотонных устройств, так и в силу уникальных свойств частиц данных размеров. В качестве наноструктур при этом могут рассматриваться как одиночные частицы, так и кластеры наночастиц, в том числе в присутствии слоистой среды.

Вместе с ростом сложности практических задач возникает естественная потребность в разработке строгих и эффективных подходов математического моделирования для обеспечения и контроля приемлемой точности вычислений. Математическая постановка задачи дифракции электромагнитных полей на металлических и полупроводниковых наночастицах в слоистой среде при этом, как правило, основывается на системе уравнений Максвелла с набором соответствующих граничных условий и условий излучения на бесконечности. Однако, если размер рассматриваемой структуры составляет меньше указанных 10 нм, то классическая электродинамическая теория становится не применимой для описания наблюдаемых физических эффектов^{3,4}. Одной из причин возникающих трудностей является тот факт, что вместе с уменьшением размера частицы при достижении области, сравнимой с длиной волны Ферми (~ 5 нм) в металлах, внутри частицы под воздействием внешних полей возникают объемные токи, и, как следствие, продольные электромагнитные поля

¹Климов В. В. Наноплазмоника. – М.: ФИЗМАТЛИТ, 2010

²Maier S. A. Plasmonics: Fundamentals and Applications. – Springer US, 2007

³Ruppin R. // Physical Review B. – 1975. – Т. 11, № 8. – С. 2871–2876. – DOI: 10.1103/physrevb.11.2871.

⁴S. Raza et al. // Physical Review B. – 2011. – Т. 84, № 12. – DOI: 10.1103/physrevb.84.121412

$\text{rot}\mathbf{E} = 0$, которые не описываются в рамках классических уравнений электродинамики. В современной периодической литературе данное явление получило название эффекта нелокальности (ЭНЛ). Вместе с этим нельзя не учитывать и рост влияния чисто квантовых эффектов при существенном уменьшении размеров частиц вплоть до субнанометровых масштабов.

Задача исследователя, как правило, состоит в необходимости точно определить положение максимума и амплитуду ПР, происходящего в наноструктурах. Это положение зависит от материала их составляющих, от формы частиц и их размеров, от свойств окружающей среды и поляризации внешнего возбуждения. Было установлено, что ЭНЛ может существенно исказить рассеивающие свойства плазмонных структур, в том числе положение и полуширину ПР, а так же структуру ближнего поля, которая может включать в себя неизлучающие компоненты полей, что приводит к сдвигу в положениях максимумов ближнего и дальнего полей⁵. Заметим, что ЭНЛ необходимо учитывать и при анализе свойств популярных в приложениях тонких металлических пленок, а также с учетом полостей в металлах или частицах, имеющих острия или участки малой кривизны.

Решение подобной сложной задачи дифракции для частиц произвольной формы в слоистых средах не представляется возможным построить аналитически, поэтому очевидно, что на первый план выходят численные методы решения задач дифракции. В настоящее время существует множество различных подходов, регулярно используемых и постоянно развивающихся. Их можно условно разделить на несколько групп. В первую группу входят прямые методы, применяемые непосредственно к системе уравнений Максвелла, такие как метод конечных разностей во временной области и метод конечных элементов⁶, а так же многочисленные подходы на основе метода Галеркина^{7,8}. Данные методы являются наиболее популярными во многом благодаря своей универсальности. Ко второй группе относятся численно-аналитические методы объемного характера: дискретное дипольное приближение и объемные интегральные уравнения. В третью группу входят численно-аналитические поверхностно-ориентированные методы: поверхностные интегральные уравнения, метод Т-матриц, метод множественных мультиполей, а также метод дискретных источников (МДИ). Наконец, поскольку очевидно, что вместе с уменьшением размеров

⁵David C., de Abajo F. J. G. // The Journal of Physical Chemistry C. – 2011. – Т. 115, № 40. – С. 19470–19475. – DOI: 10.1021/jp204261u.

⁶Gallinet B., Butet J., Martin O. J. F. // Laser Photonics Reviews. – 2015. – Т. 9, № 6. – С. 577–603. DOI: 10.1002/lpor.201500122

⁷Ильинский А. С, Кравцов В. В., Свешников А. Г. Математические модели электродинамики. — М.: Высш. шк., 1991. — 224 с.

⁸N. Schmitt et al. // Journal of Computational Physics. – 2016. – Т. 316. – С. 396–415. – DOI: 10.1016/j.jcp.2016.04.020

рассматриваемых структур все большую роль начинают играть чисто квантовые эффекты, нельзя не сказать о несколько обособленной четвертой группе методов, основанных на квантовой теории, среди которых наиболее известным является теория зависящего от времени функционала плотности (Time-Dependent Density Functional Theory, TDDFT)⁹.

Развитие поверхностно-ориентированных подходов представляется одним из наиболее перспективных направлений исследований, поскольку данные методы позволяют аналитически учесть особенности конкретных задач и упростить вычислительный алгоритм, что, как правило, приводит к повышению точности и производительности вычислений¹⁰. При этом они применимы к широкому кругу актуальных задач в доквантовом диапазоне размеров структур. Кроме того, в рамках ряда численно-аналитических методов возможно проведение апостериорной оценки погрешности расчетов. Всеми перечисленными достоинствами обладает полуаналитический метод дискретных источников (МДИ), динамично развиваемый научной группой А. Г. Свешникова и Ю. А. Еремина в Московском государственном университете имени М. В. Ломоносова.

Целью данной работы является разработка новых математических моделей, позволяющих точно предсказывать отклик миниатюрных плазмонных наносистем с характеристическим размером от 1 до 10 нанометров при их возбуждении различными видами внешних источников, а так же компьютерная реализация данных моделей в форме высокопроизводительного, функционального и гибкого программного обеспечения.

Для достижения поставленной цели были решены следующие **задачи**:

1. Изучение особенностей физических процессов в плазмонных системах, влияющих на их свойства при уменьшении характерного размера частицы.
2. Исследование возможности моделирования таких систем в рамках классической системы уравнений Максвелла, а так же в рамках её расширений, учитывающих динамику поведения носителей тока в плазмонной среде.
3. Анализ возможности реализации учета эффекта нелокальности в рамках различных и широко распространенных вычислительных подходов и обоснование целесообразности выбора полуаналитического метода дискретных источников для наиболее полного достижения цели настоящей работы.
4. Разработка математических моделей и реализация соответствующих компьютерных модулей для решения задач дифракции

⁹T. V. Teperik et al // Optics Express. – 2013. – Т. 21, № 22. – С. 27306. – DOI: 10.1364/oe.21.027306.

¹⁰The Generalized Multipole Technique for Light Scattering / под ред. Т. Wriedt, Y. Eremin. — Springer International Publishing, 2018

плоской волны и электронного пучка на плазмонных наноструктурах с учетом размеров рассматриваемых наносистем, с учетом наличия продольных волн в плазмонной среде, и с учетом расположения структур на подложке.

5. Математическое обоснование предложенных моделей и исследование на их основе пределов применимости «нелокального» описания плазмонных систем. Оценка точности предлагаемого подхода.
6. Реализация программного комплекса, включающего в себя все вышеперечисленные модели. Исследование особенностей влияния эффекта нелокальности на экспериментально измеримые характеристики различных наноструктур, такие как сечения рассеяния и спектры характеристических потерь энергии электронами (Electron Energy Loss Spectroscopy, EELS).

Научная новизна:

1. Предложена оригинальная вычислительная схема метода дискретных источников, позволяющая при использовании более узкого класса полных и замкнутых систем функций точно моделировать трехмерные частицы малого диаметра несферической формы в среде с подложкой, получившая название гибридной схемы.
2. Впервые метод дискретных источников применен для решения задачи вычисления потерь энергии электронного пучка и получения соответствующего спектра EELS.
3. Впервые реализован учет эффекта нелокальности в эффективном полуаналитическом методе дискретных источников при решении трехмерных задач дифракции как плоских электромагнитных волн, так и электронного пучка на плазмонных наночастицах в однородной среде. Задача дифракции с учетом эффекта нелокальности так же впервые решена для частицы на подложке.
4. С помощью реализованного на основе предложенного метода программного комплекса выполнено исследование влияния продольных полей на характеристики плазмонных наносистем. Подтверждена работоспособность и высокая эффективность предложенного метода. Круг решаемых задач не ограничивается рассмотренными в настоящей работе, поскольку гибридная схема МДИ и предложенная интеграция эффекта нелокальности могут быть обобщены на более широкий класс задач дифракции на рассеивателях самых разнообразных форм в слоистых средах.

Практическая значимость:

Все построенные алгоритмы реализованы в виде программного комплекса, который может быть применен для детального изучения рассеивающих свойств широкого класса плазмонных наноструктур указанных размеров в практических задачах проектирования, анализа и оптимизации инновационных устройств. Также данное программное обеспечение

может использоваться с целью исследования физических процессов, происходящих в наноразмерных полупроводниковых, металлических и также популярных в приложениях фотоники диэлектрических структурах и метаматериалах для обнаружения новых эффектов, явлений и зависимостей.

Методология и методы исследования. В основе методологии исследования лежит теоретический анализ задачи дифракции электромагнитного возмущения на плазмонной наноструктуре и ее решение на основе ряда как вычислительных, так и аналитических подходов, основным из которых является метод дискретных источников. Таким образом, в диссертации используются методы математической физики, электродинамики сплошных сред, численные методы, и некоторые аспекты физики твердого тела и функционального анализа.

Основные положения, выносимые на защиту и соответствующие пунктам 3, 4 и 5 паспорта специальности 05.13.18:

1. Предложена модификация метода дискретных источников (МДИ), получившая название гибридной схемы, предполагающая использование более узкого класса полных и замкнутых систем линейно независимых функций с простой структурой носителя.
2. На основе гибридной схемы МДИ разработаны математические модели трехмерных задач дифракции электромагнитных полей на наноразмерных плазмонных структурах, в том числе расположенных на подложке, с учетом эффекта нелокальности.
3. Реализованы численные алгоритмы решения указанных задач дифракции, позволяющие корректно моделировать экспериментально измеримые характеристики плазмонных наноструктур, таких как дифференциальное сечение рассеяния и спектр характеристических потерь энергии электронами.
4. На основе компьютерной реализации гибридной схемы МДИ проведен анализ оптических свойств наноразмерных структур, представляющих собой как одиночные плазмонные частицы, так и димеры. В качестве внешнего возбуждения использовались поля плоской линейно поляризованной волны и электронного пучка.
5. В результате моделирования установлено существенное влияние ЭНЛ, выражающееся в снижении амплитуды плазмонного резонанса на порядок величины, и в сдвиге резонансной частоты в коротковолновую область на величину от 2 до 15нм, что является критическим для использования наноразмерных частиц в современных технологиях.

Достоверность полученных результатов обеспечивается с помощью перекрестного сравнения с доступными аналитическими решениями для простейших плазмонных систем, сравнения с численными результатами, полученными другими авторами в рамках иных подходов, с помощью

апостериорной оценки точности вычислений, и с помощью сравнения результатов с имеющимися в литературе экспериментальными данными.

Апробация работы.

Основные результаты диссертации докладывались на 4 научных семинарах Московского государственного университета имени М. В. Ломоносова:

- Семинар «Математические методы в естественных науках» под руководством д.ф.м.н., профессора А.Н. Боголюбова на кафедре математики физического факультета (2019 г.);
- Семинар кафедры математической физики факультета вычислительной математики и кибернетики (2019 г.);
- Международный научный семинар «Advanced Light Scattering Techniques» под руководством д.ф.м.н., профессора А. В. Разгулина, факультет вычислительной математики и кибернетики МГУ имени М.В. Ломоносова (2019 г.);
- Международный научный семинар «Актуальные проблемы математической физики» на кафедре математики физического факультета (2014 г.);

а также на 22 международных и всероссийских научных конференциях и семинарах. Ниже перечислены наиболее важные из них.

- Международный семинар по рассеянию света «Bremen Workshop on Light Scattering» под руководством Т. Вридта в институте материаловедения им. Лейбница, г. Бремен, Германия (2017–2019 гг., неоднократно);
- Международный научный семинар по электронной спектроскопии и рассеянию света «Athens-Moscow-Bremen Workshop on EELS- and Light Scattering Simulation» под руководством Т. Вридта в институте материаловедения им. Лейбница, г. Бремен, Германия (2018 г.);
- Международная конференция «Акустооптические и радиолокационные методы измерений и обработки информации (ARMIMP)», г. Суздаль (2013 г. – устный доклад, 2017 г. – пленарный доклад);
- Конференция «Ломоносовские чтения», г. Москва, физический факультет МГУ им. М. В. Ломоносова (2019 г.);
- Международный симпозиум «Progress In Electromagnetics Research Symposium (PIERS)», г. Санкт-Петербург (2017 г.);
- Международная конференция «SPIE Optics + Photonics», г. Сан-Диего, США (2017 г.);
- Международная конференция по нанофотонике и метаматериалам «METANANO», г. Сочи (2018 г.);
- Всероссийская школа-семинар «Волновые явления в неоднородных средах» имени А. П. Сухорукова («Волны»), д. Красновидово, Московская область (2016–2018 гг., неоднократно);

- Международная конференция германо-российского центра междисциплинарных научных исследований G-RISC (German-Russian Interdisciplinary Science Center) «Science and Progress», г. Санкт-Петербург, Петергоф, Санкт-Петербургский Государственный Университет, физический факультет (2016 г.);
- а так же на многочисленных международных форумах студентов и аспирантов «Ломоносов» в МГУ и других конференциях молодых ученых, в том числе проводимых под эгидой международных сообществ SPIE и OSA.

В 2019 году проект «Analysis of plasmonic nanodimer excited by electron beam (EELS) accounting for Nonlocal Effect with the Discrete Sources Method», выполненный в рамках диссертационной работы, был отмечен наградой германо-российского центра междисциплинарных научных исследований G-RISC за лучший проект в области математики.

Личный вклад. Представленное исследование является самостоятельной работой автора. Совместно с научным руководителем автором сформулированы цель и задачи исследований. Личный вклад состоит в интеграции теории обобщенного нелокального оптического отклика (ОНОО), позволяющей учитывать наличие продольных электромагнитных волн в плазмонной среде, в метод дискретных источников; разработке гибридной схемы метода дискретных источников и построении ряда математических моделей задач дифракции на ее основе, в том числе новой модели дифракции электронного пучка на частице в среде; реализации эффективных вычислительных алгоритмов построенных моделей, а также в создании и тестировании соответствующего программного комплекса; и, наконец, в исследовании влияния эффекта нелокальности на характеристики плазмонных наноструктур. Все численные расчеты проводились автором лично. Автор принимал активное участие в анализе и интерпретации полученных результатов, оформлении публикаций в виде научных статей. Все доклады на конференциях были сделаны им самостоятельно.

Вклад автора диссертации в совместных публикациях [1,2] заключается в разработке и программной реализации новых математических моделей на основе гибридной схемы МДИ, в их верификации и оценке пределов их применимости, в проведении с их помощью всех вычислительных расчетов, и в непосредственной подготовке и оформлении текстов статей. Обоснование гибридной схемы в работе [1], включающее оценку пределов ее применимости и доказательство теоремы, проведено в тесном сотрудничестве с ведущим специалистом в области математического моделирования и одним из разработчиков метода дискретных источников Ю. А. Ереминым. Теоретические основы модели с учетом эффекта нелокальности в работе [2] также были выработаны в ходе многочисленных дискуссий с Ю. А. Ереминым. Кроме того, Ю. А. Ереминым проведен предоставлены численные результаты для задач дифракции плоской электромагнитной

волны на препятствии в рамках общей схемы МДИ для верификации нового подхода, предложенного в диссертации.

Публикации. Основные результаты по теме диссертации изложены в 25 печатных изданиях, 3 из которых изданы в журналах, рекомендованных ВАК, и 21 — в сборниках трудов конференций и тезисах докладов. В общей сложности среди изданных работ 6 опубликованы в изданиях, индексируемых RSCI, Web of Science, Scopus, и определенных п. 2.3 Положения о присуждении ученых степеней в Московском государственном университете имени М.В. Ломоносова (см. список наиболее значимых публикаций).

Содержание работы

Во **введении** содержится общая характеристика работы: описана предметная область, введены основные используемые определения, обосновывается актуальность исследований, формулируется цель, ставятся задачи работы, излагается научная новизна и практическая значимость, приводится обоснование достоверности, а также сформулированы основные положения диссертации.

В **первой главе** рассматриваются существующие теоретические подходы к моделированию характеристик плазменных наноструктур с учетом эффекта нелокальности. Для этого помимо поперечных электромагнитных волн в среде с волновым числом k_T , описываемых классической системой уравнений Максвелла, необходимо также рассматривать продольные электромагнитные волны с иным волновым числом k_L ¹¹. При этом закон дисперсии для продольных волн определяется с помощью гидродинамической теории Друде движения электронов в металле

$$k_L^2 = \frac{\omega^2 - j\gamma\omega - \omega_p^2/\varepsilon'}{\beta^2},$$

или ее расширения, получившего название «теория обобщенного нелокального оптического отклика». Использование гидродинамических уравнений приводит к модифицированному закону Ома

$$\frac{\beta^2}{\omega^2 - j\gamma\omega} \nabla (\nabla \cdot \mathbf{J}(\mathbf{r}, \omega)) + \mathbf{J}(\mathbf{r}, \omega) = \sigma_d \mathbf{E}(\mathbf{r}, \omega),$$

и, как следствие, к новому виду одного из уравнений Максвелла для случая установившихся колебаний:

$$\text{rot} \mathbf{H}(\mathbf{r}, \omega) = jk \left(\varepsilon_d + \frac{\beta^2 \varepsilon'}{\omega(\omega - j\gamma)} \text{graddiv} \right) \mathbf{E}(\mathbf{r}, \omega).$$

¹¹S. Raza et al. // Journal of Physics: Condensed Matter. – 2015. – Т. 27, №18. – С. 183204. – DOI: 10.1088/0953-8984/27/18/183204

Здесь везде ω_p – плазменная частота металла, $\varepsilon_d(\omega) = \varepsilon_T = \varepsilon'(\omega) - \frac{\omega_p^2}{\omega(\omega - j\gamma)}$ – диэлектрическая проницаемость поперечных волн типа Друде с учетом вклада токов проводимости $\sigma_d = \frac{-j\omega_p^2}{4\pi(\omega - j\gamma)}$, γ – частота столкновений электронов, а также при рассматриваемых в дальнейшем условиях задач $\beta^2 = 3/5v_F^2$, v_F – скорость Ферми. Кроме того, показано, что данное уравнение можно переписать в виде двух уравнений Гельмгольца, независимо описывающих продольную и поперечную компоненты внутреннего поля в плазмонной частице $\mathbf{E}_i = \mathbf{E}_T + \mathbf{E}_L$:

$$(\nabla^2 + k_L^2) \operatorname{div} \mathbf{E}(\mathbf{r}, \omega) = 0, \quad (\nabla^2 + k_T^2) \operatorname{rot} \mathbf{E}(\mathbf{r}, \omega) = 0. \quad (1)$$

В силу появления нового слагаемого \mathbf{E}_L в системе уравнений Максвелла для ее однозначной разрешимости необходимо привлечение дополнительного граничного условия. Исходя из предположений, что металлическая частица D_i находится в диэлектрической среде D_0 , и что в данном случае равновесная плотность газа свободных электронов \tilde{n}_0 на границе имеет ступенчатый профиль с равенством нулю в диэлектрике, его можно записать в виде

$$(\varepsilon' \mathbf{E}_i(P) - \varepsilon_0 \mathbf{E}_0(P)) \cdot \mathbf{n}_P = 0.$$

Таким образом, показано, что для учета эффектов пространственной дисперсии в случае дифракции электромагнитного поля на частице в однородной среде необходимо рассматривать следующую постановку задачи:

$$\begin{aligned} \operatorname{rot} \mathbf{H}_i(M) &= jk (\varepsilon_T \mathbf{E}_i(M) + \xi^2 \operatorname{grad} \operatorname{div} \mathbf{E}_L(M)), & \operatorname{rot} \mathbf{H}_0(M) &= jk \varepsilon_0 \mathbf{E}_0(M), \\ \operatorname{rot} \mathbf{E}_i(M) &= -jk \mu_i \mathbf{H}_i(M), & \operatorname{rot} \mathbf{E}_0(M) &= -jk \mu_0 \mathbf{H}_0(M), \\ \mathbf{E}_i(M) &= \mathbf{E}_T(M) + \mathbf{E}_L(M), & \mathbf{E}_0(M) &= \mathbf{E}_0^S(M) + \mathbf{E}_0^0(M), \\ M &\in D_i, & M &\in D_0, \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \mathbf{n}_P \times [\mathbf{E}_i(P) - \mathbf{E}_0^S(P)] &= \mathbf{n}_P \times \mathbf{E}_0^0(P), \\ \mathbf{n}_P \times [\mathbf{H}_i(P) - \mathbf{H}_0^S(P)] &= \mathbf{n}_P \times \mathbf{H}_0^0(P), \\ \mathbf{n}_P \cdot \varepsilon' \mathbf{E}_i(P) &= \mathbf{n}_P \cdot \varepsilon_0 \mathbf{E}_0(P), \quad P \in \partial D_i, \end{aligned}$$

$$\lim_{r \rightarrow \infty} r \left(\sqrt{\varepsilon_0} \mathbf{E}_0^S(M) \times \frac{\mathbf{r}}{r} - \sqrt{\mu_0} \mathbf{H}_0^S(M) \right) = 0, \quad r = |M| \rightarrow \infty. \quad (2)$$

Здесь $\mathbf{E}_0^0, \mathbf{H}_0^0$ – поле внешнего возбуждения, $\mathbf{E}_0^S, \mathbf{H}_0^S$ – рассеянное поле в области D_0 , внешней по отношению к частице, ε_0 – диэлектрическая проницаемость внешней среды, \mathbf{n}_P – внешняя нормаль к гладкой поверхности

частицы ∂D_i , $\xi^2 = \varepsilon' \beta^2 / (\omega^2 - j\gamma\omega)$ – характерный масштаб ЭНЛ в рамках гидродинамической теории Друде, $k = \omega/c$. В завершение главы обсуждаются вопросы применения существующих вычислительных подходов к анализу данного типа задач с учетом продольных волн, и обосновывается выбор метода дискретных источников.

Во **второй главе** для решения задачи (2) как в локальном, так и в нелокальном приближении предлагается модифицированная вычислительная схема метода дискретных источников (МДИ)¹², получившая название гибридной. Ее особенностью является использование более узкого класса полных и замкнутых систем линейно независимых функций, соответствующих специфике проблемы. Система источников представляет собой электрические и магнитные дипольные источники на оси симметрии трехмерной частицы с потенциалами в виде сферических функций Ханкеля и Бесселя:

$$\mathbf{A}_{i,n}^{ext}(M, M_n) = h_0^{(2)}(k_{ext} R_{MM_n}) \cdot \mathbf{e}_i, \quad \mathbf{A}_{i,n}^{int} = j_0(k_{int} R_{MM_n}) \cdot \mathbf{e}_i.$$

Здесь $i = x, y, z$ – индекс соответствующего орта декартовой системы координат, $h_0^{(2)}(\cdot)$ – сферическая функция Ханкеля второго рода, $j_0(\cdot)$ – сферическая функция Бесселя, R_{MM_n} – расстояние между точкой наблюдения M и точкой n -го источника M_n , k_{ext}, k_{int} – волновые числа поперечных полей в соответствующих областях. В параграфах 2 и 3 второй главы установлены теоретические пределы применимости данной системы источников. Показано, что она способна обеспечивать точность результатов для структур с характерными размерами порядка 10нм, которые в настоящее время представляют особый интерес с точки зрения квантовой наноплазмоники. Для этого сформулирована и доказана теорема о полноте системы электрических и магнитных дипольных источников, расположенных на незамкнутой цилиндрической поверхности и проанализировано поведение данной системы источников при стремлении радиуса выбранной поверхности к нулю. На основе проведенного исследования сформулированы теоремы о полноте системы вертикальных источников, и о полноте системы горизонтальных источников для полей специального вида в пространстве $L^2_\tau(\partial D_i)$.

В параграфе 4 строятся решения для внутреннего и рассеянного полей в задаче (2) на основе предложенной системы источников. При этом, как показано в параграфе 5, на основе решений уравнения Гельмгольца для продольных волн (1)

$$\begin{aligned} \mathbf{E}_{L, j_0}(M, M_n) &= \text{grad}(j_0(k_L R_{MM_n})), \\ \mathbf{E}_{L, \cos \phi}(M, M_n) &= \text{grad}(j_1(k_L R_{MM_n}) \sin \Theta \cos \phi), \\ \mathbf{E}_{L, \sin \phi}(M, M_n) &= \text{grad}(j_1(k_L R_{MM_n}) \sin \Theta \sin \phi) \end{aligned}$$

¹²Еремин Ю. А., Свешников А. Г. Метод дискретных источников в задачах электромагнитной дифракции. – Издательство Московского Университета, 1992

в гибридной схеме возможен учет эффекта нелокальности. Источники с полями данного вида добавляются к основной системе источников, описывающей поперечные поля. Данный подход может быть использован как при анализе рассеивающих свойств одиночных плазмонных наночастиц несферической формы в однородной среде, так и при анализе свойств плазмонных димеров. При этом в рамках гибридной схемы МДИ сохраняются основные отличительные преимущества метода дискретных источников, среди которых – возможность проведения апостериорной оценки погрешности расчетов.

Третья глава посвящена построению математических моделей плазмонных структур с учетом эффекта нелокальности и их программной реализации на основе развитого подхода. В первую очередь вычислительный алгоритм строится для простых задач дифракции плоской линейно поляризованной волны на одиночной плазмонной осесимметричной наночастице в однородной диэлектрической среде. На их примере успешно проведена апробация гибридной схемы, в том числе с помощью сравнения с аналитическими решениями¹³ для сферической частицы (см. рис. 1) и апостериорной оценки погрешности расчетов. При этом рассматривались как классическое локальное приближение (ЛП) в отсутствие продольных волн в плазмонной среде, так и приближения гидродинамической теории (ГДТ) наряду с теорией обобщенного нелокального оптического отклика (ОНОО).

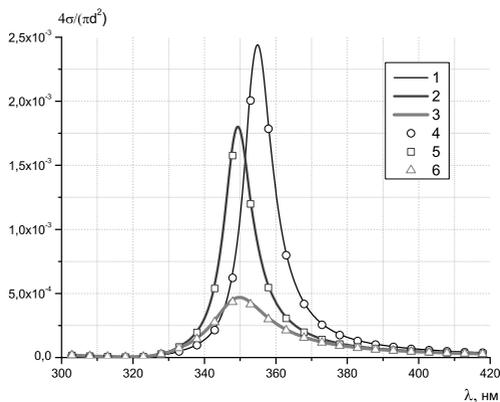


Рис. 1 — Полное сечение рассеяния для сферы $d = 6$ нм. Сплошные линии — аналитическое решение, символьные — решение МДИ. 1,4 — локальное приближение (ЛП); 2,5 — ГДТ; 3,6 — ОНОО.

¹³S. Raza et al. // Journal of Physics: Condensed Matter. – 2015. – Т. 27, №18. – С. 183204. – DOI: 10.1088/0953-8984/27/18/183204

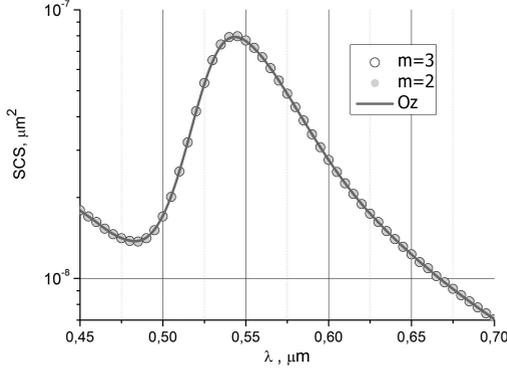


Рис. 2 — Сечение рассеяния для одиночного вытянутого Au сфероида с эквивалентным диаметром 10нм и соотношением осей 2 при падении плоской Р-поляризованной волны под углом $\pi/2$. $m=3$ – общее число гармоник 3; $m=2$ – общее число гармоник 2; Oz – только вертикальные электрические диполи.

Также с помощью вычислительного эксперимента подтверждена применимость гибридной схемы метода дискретных источников в установленных в главе 2 пределах. Так, в частности, в соответствии с теоремой о полноте системы вертикальных источников на оси показано, что данной системы достаточно для моделирования отклика вытянутого сфероида при падении плоской волны перпендикулярно его большей оси (см. рис. 2).

С целью анализа наиболее широкого круга задач на основе МДИ впервые строится модель дифракции релятивистского электрона на препятствии, позволяющая моделировать спектр характеристических потерь энергии электронами (Electron Energy Loss Spectroscopy, EELS). При этом вероятность потерь энергии электроном определяется по формуле¹⁴

$$P(\omega) = \frac{e}{\pi\hbar\omega} \int_{-\infty}^{+\infty} \text{Re} \{ \mathbf{E}_0^S(\mathbf{r}_e, \omega) \exp(-i\omega z_e/v) \} d\mathbf{r}_e.$$

Здесь $\mathbf{r}_e = (b_x, b_y, z_e)$ – радиус-вектор электрона, e – единичный заряд, \hbar – приведенная постоянная Планка, v – скорость прямолинейного и равномерного движения электрона вдоль оси z с прицельным параметром (b_x, b_y) по отношению к частице. Предполагается, что потери кинетической энергии электрона малы ($\sim 0.5 - 50\text{эВ}$ против изначальной энергии $\sim 50 - 300\text{кэВ}$).

Верификация модели проведена с помощью сравнения с аналитическим решением¹⁵ для локального приближения. Кроме того, было

¹⁴de Abajo F. J. G. // Reviews of Modern Physics. – 2010. – Т. 82, № 1. – С. 209–275. – DOI: 10.1103/revmodphys.82.209

¹⁵de Abajo F. J. G. // Physical Review B. – 1999. – Т. 59, № 4. – С. 3095–3107. – DOI: 10.1103/physrevb.59.3095

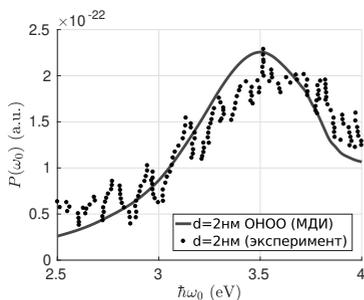


Рис. 3 — Экспериментальный и расчетный EELS-спектры для Ag наносферы диаметром $d = 2$ нм, внедренной в кварц. Расчеты проводились в рамках МДИ-ОНОО.

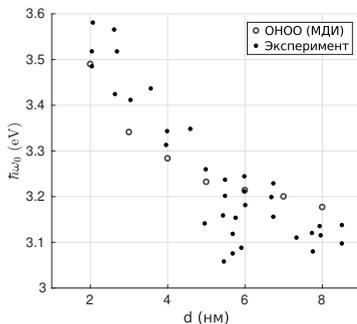


Рис. 4 — Экспериментальная и расчетная зависимость резонансной частоты $h\omega_0$ от диаметра сферической Ag частицы диаметра d , внедренной в кварц (EELS). Расчеты проводились в рамках МДИ-ОНОО.

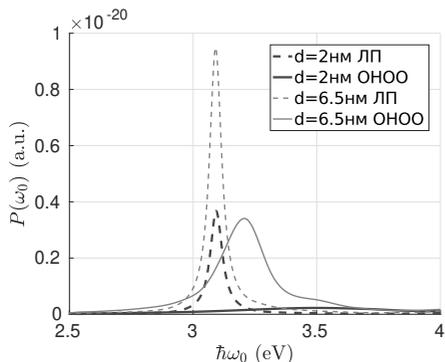


Рис. 5 — Спектр EELS в рамках МДИ для Ag наносфер диаметрами 2 нм и 6.5 нм в кварцевой структуре. Локальное приближение (ЛП) – пунктирные линии, ОНОО-приближение – сплошные линии.

проведено сравнение результатов с новейшими экспериментальными данными¹⁶, отражающими влияние квантовых эффектов, к числу которых относится ЭНЛ, и важность их учета (см. рис. 3–5). Данные результаты наглядно иллюстрируют сдвиг частоты плазмонного резонанса в коротковолновую область спектра при уменьшении размера частицы, который полностью отсутствует в рамках классических расчетов ЛП и может быть предсказан с помощью ОНОО.

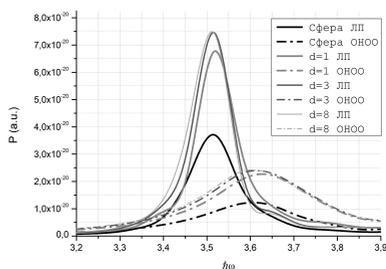


Рис. 6 — Спектр EELS для Ag сферы и для димера из двух Ag сфер радиусом 2 нм в вакууме с варьируемым зазором d для первой геометрии задачи. Сплошные линии – без учета ЭНЛ. Пунктирные линии – в рамках ОНОО.

¹⁶A. Campos et al. // Nature Physics. – 2018. – Т. 15, № 3. – С. 275–280. – DOI: 10.1038/s41567-018-0345-z. , для сравнения исп. fig. 2 и 4 данной статьи

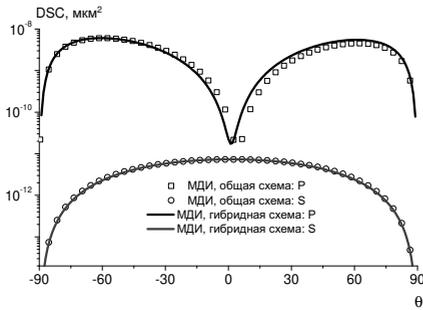


Рис. 7 — Диаграммы рассеяния для сфероида $a = 7\text{ нм}$, $b = 28\text{ нм}$ на кремниевой подложке, падение под углом $\theta_0 = 60^\circ$

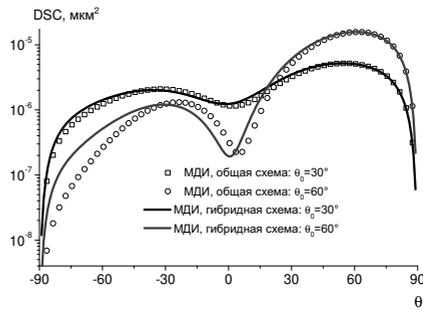


Рис. 8 — Диаграммы рассеяния плоской Р-поляризованной волны для сфероида $a = 20\text{ нм}$, $b = 200\text{ нм}$ на кремниевой подложке

Далее рассматривается построение математических моделей дифракции плоских волн и электронного пучка на паре близкорасположенных плазмонных частиц – димере. В качестве одного из примеров рассматривается задача, в которой траектория электрона проходит вдоль димера, не пересекая его середины (рис. 6). Данный пример наглядно демонстрирует, что в случае системы двух почти невзаимодействующих частиц, находящихся на большом удалении друг от друга, вероятность потерь энергии электрона удваивается на резонансной частоте одиночной частицы. Отмечается, что одна из особенностей гибридной схемы, а именно сшивка полей на всей поверхности рассеивателя, позволяет в общем случае рассматривать неосесимметричные системы частиц.

В завершение главы проводится обобщение моделей дифракции плоских волн на случай задач с подложкой. В данном случае решение для внешнего поля строится на основе тензора Грина слоистой среды¹⁷ вместо изначально предложенной в главе 2 системы источников. Как и в случае однородной среды, проводится верификация гибридной схемы МДИ в локальном приближении, что в силу ее новизны проводится на примере прозрачной частицы из оргстекла (рис. 7,8). Для металлических частиц показано значительное влияние эффекта нелокальности на рассеивающие свойства структур, которое зависит как от их материала, размеров и формы, так и от материала подложки (рис. 9).

Таким образом, продемонстрированы возможности гибридной схемы метода дискретных источников. Следует отметить, что еще одной ее характерной особенностью благодаря сшивке полей на всей поверхности рассеивателя является возможность решать задачу сразу для всего набора внешних возбуждений – в данном случае, для всевозможных углов падения и плоскостей вращения плоских линейно поляризованных волн в задачах с

¹⁷Дмитриев В. И., Захаров Е. В. Метод интегральных уравнений в вычислительной электродинамике. — М. : МАКС Пресс, 2008.

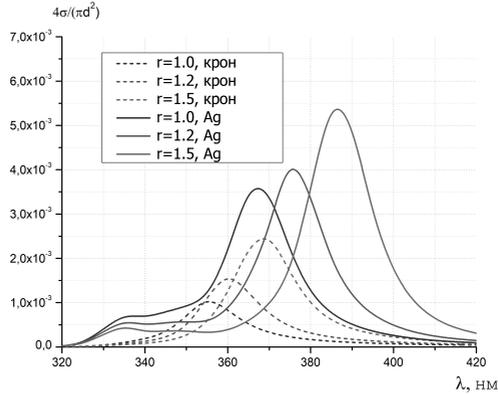


Рис. 9 — Полные сечения рассеяния для сплюснутых серебряных сфероидов диаметром от 10нм с соотношением осей r на различных подложках в ОНОО-приближении.

подложкой, и траекторий электронов в задачах для однородной среды, что делает возможной эффективную численную соответствующего программного комплекса. В дальнейшем представляется возможным и рассмотрение EELS в задачах с подложкой, однако в этом случае помимо необходимости записи явного вид формул отраженного от границы раздела сред поля релятивистского точечного заряда может потребоваться проведение ряда дополнительных исследований.

В общем случае предложенный численный подход позволяет исследовать осесимметричные частицы и кластеры частиц несферической формы в слоистых средах. В связи с этим полученные результаты могут быть использованы в качестве основы для построения новых вычислительных схем для анализа актуальных в приложениях наноструктур, к числу которых относятся неосесимметричные группы частиц (димеры и тримеры) в средах с подложкой.

В **заклучении** приведены основные результаты работы, которые заключаются в следующем:

1. Предложена модификация метода дискретных источников (МДИ), получившая название гибридной схемы, предполагающая использование более узкого класса полных и замкнутых систем линейно независимых функций с простой структурой носителя и позволяющая проводить анализ рассеивающих свойств трехмерных наноструктур несферической формы, находящихся в однородной диэлектрической среде, либо расположенных на подложке. Проведено математическое обоснование данной схемы и предложен способ учета эффектов пространственной дисперсии среды в ее рамках с помощью гидродинамической теории и теории обобщенного нелокального оптического отклика.

2. Построены трехмерные математические модели дифракции электромагнитных полей как на одиночных плазмонных наночастицах, так и на димерах с учетом ЭНЛ. В качестве поля внешнего возбуждения в ряде задач используются плоские линейно поляризованные волны, распространяющиеся под произвольным углом. Впервые на основе МДИ предложена математическая модель дифракции электронного пучка на препятствии и проведено сравнение полученных с ее помощью расчетных спектров характеристических потерь энергии электронов с экспериментальными данными.
3. Разработаны и реализованы вычислительные алгоритмы для решения соответствующих граничных задач дифракции с учетом особенностей численного моделирования в задачах с эффектом нелокальности. Создан программный комплекс в среде MATLAB с программными вставками на языке FORTRAN, позволяющий проводить анализ различных характеристик плазмонных наноструктур в широком диапазоне параметров с учетом эффектов пространственной дисперсии плазмонной среды и возможностью апостериорного проведения контроля точности расчетов, в том числе в режиме параллельных вычислений.
4. На основе компьютерной реализации гибридной схемы МДИ проведен анализ оптических свойств наноразмерных структур, представляющих собой как одиночные плазмонные частицы, так и димеры. В результате моделирования установлено существенное влияние ЭНЛ, выражающееся в снижении амплитуды плазмонного резонанса на порядок величины, и в сдвиге резонансной частоты в коротковолновую область на величину от 2 до 15нм, что является критическим для использования наноразмерных частиц в современных технологиях.

Наиболее значимые публикации автора по теме диссертации

1. *Еремин Ю. А., Лопушенко И. В.* Гибридная схема метода дискретных источников для анализа граничных задач нанооптики // Вестник Московского университета. Серия 15: Вычислительная математика и кибернетика. — 2016. — № 1. — С. 3—10.
2. *Еремин Ю. А., Лопушенко И. В.* Учет эффекта нелокальности при рассеянии света на плазмонных наночастицах в гибридной схеме метода дискретных источников // Вестник Московского университета. Серия 15: Вычислительная математика и кибернетика. — 2017. — № 4. — С. 14—21.

3. *Лопушенко И. В.* Моделирование возбуждения плазмонных частиц электронным пучком (EELS) с помощью метода дискретных источников // Учен. зап. физ. фак-та Моск. ун-та. — 2018. — № 6.
4. *Lopushenko I. V.* Numerical simulation of nonlocal optical response in light scattering by nanoparticle on the substrate // Plasmonics: Design, Materials, Fabrication, Characterization, and Applications XV / под ред. Т. Tanaka, D. P. Tsai. — SPIE, 08.2017. — DOI: [10.1117/12.2273280](https://doi.org/10.1117/12.2273280).
5. *Lopushenko I. V.* Incorporation of non-local optical response into the discrete sources method to solve 3D scattering problems of nanoplasmonics // 2017 Progress In Electromagnetics Research Symposium - Spring (PIERS). — IEEE, 05.2017. — DOI: [10.1109/piers.2017.8262096](https://doi.org/10.1109/piers.2017.8262096).
6. *Lopushenko I.* Numerical simulation of electron energy loss spectroscopy accounting for nonlocal effect in plasmonic nanoparticles // Journal of Physics: Conference Series. — 2018. — Сер. — Т. 1092. — С. 012079. — DOI: [10.1088/1742-6596/1092/1/012079](https://doi.org/10.1088/1742-6596/1092/1/012079).

Лопушенко Иван Владимирович

Разработка и реализация новых математических моделей нанооптики и
плазмоники на основе метода дискретных источников

Автореф. дис. на соискание ученой степени канд. физ.-мат. наук

Подписано в печать _____.____._____. Заказ № _____

Формат 60×90/16. Усл. печ. л. 1. Тираж 100 экз.

Типография _____