

ЧАСТОТА И ШИРИНА ПОВЕРХНОСТНОГО ПЛАЗМОНА В КЛАСТЕРЕ МАЛОГО РАЗМЕРА

Ю. Н. Овчинников*

Институт теоретической физики им. Л. Д. Ландау Российской академии наук
142432, Черноголовка, Московская обл., Россия

Поступила в редакцию 31 января 2002 г.

Исследована зависимость частоты и ширины поверхностного плазмона ω_s от размера кластера. При рассмотрении данной проблемы возникает большой численный параметр, определяющий форму потенциала электромагнитного поля внутри кластера и приводящий к обширному плато на зависимости ω_s от радиуса кластера.

PACS: 52.35.Hr, 73.90.+f

1. ВВЕДЕНИЕ

В настоящее время возрос интерес к исследованию частиц малого размера (кластеров). Экспериментально могут быть созданы и исследованы кластеры, содержащие от нескольких атомов до нескольких тысяч [1, 2]. Классическая теория [3] предсказывает существование поверхностного плазмона с частотой, зависящей главным образом от формы поверхности и типа возбуждения. Для сферической частицы в вакууме зависимость частоты поверхностного плазмона ω_L от орбитального момента L определяется простым выражением: $\omega_L \propto (L/(2L+1))^{1/2}$ [4, 5]. Размер кластера при этом предполагается много меньшим длины волны фотона в вакууме. Экспериментальная ширина поверхностного плазмона всегда много больше радиационной ширины и слабо зависит от размера кластера [2]. Из экспериментальных данных [2] следует, что на зависимости частоты поверхностного плазмона от радиуса кластера существует достаточно большое плато в области $5 \text{ \AA} < R < 20 \text{ \AA}$. В области $R > 20 \text{ \AA}$ поправка к «объемному» значению частоты поверхностного плазмона пропорциональна $-(\kappa R)^{-1}$, где κ — динамическая глубина экранирования электрического поля. Коэффициент пропорциональности оказывается численно большим, что и приводит к появлению плато.

Ниже будет показано, что для зависимости час-

тоты поверхностного плазмона от радиуса кластера существенны пространственная и частотная дисперсии ядер, связывающих плотность тока и заряда с электромагнитным полем.

2. УРАВНЕНИЯ ДЛЯ ПЛОТНОСТИ ЗАРЯДА И ТОКА

Уравнения для плотности тока и заряда получим с помощью метода температурных функций Грина с последующим аналитическим продолжением по частоте. Метод был развит для сверхпроводников [6] и применительно к нормальному металлу выглядит достаточно просто:

$$\begin{aligned} \left(\mathbf{v} \frac{\partial \hat{G}_p^1}{\partial \mathbf{r}} \right) + \omega_0 \tau_Z \hat{G}_p^1 + \frac{1}{\tau} \tau_Z \hat{G}_p^1 - \\ - \tau_Z n v \int d\Omega_{p_1} \sigma_{pp_1} \hat{G}_{p_1}^1 = 2ie\tau_Z (\varphi - (\mathbf{v} \cdot \mathbf{A}_1)\tau_Z), \end{aligned} \quad (1)$$

где n — концентрация примесей, σ_{pp_1} — сечение рассеяния, $\tau^{-1} = nv \int d\Omega_{p_1} \sigma_{pp_1}$ — время рассеяния электрона, \mathbf{A}_1, φ — соответственно векторный и скалярный потенциалы, p, v — соответственно импульс и скорость на поверхности Ферми. Температурная функция Грина \hat{G}_p^1 отлична от нуля только в области

$$\omega_n(\omega_n + \omega_0) < 0,$$

*E-mail: ovc@itp.ac.ru, ovchin@mpipks-dresden.mpg.de

где

$$\omega_n = 2\pi T(n + 1/2), \quad n = 0, \pm 1, \pm 2, \dots,$$

T — температура, $\omega_0 = 2\pi TN$ — частота внешнего поля. Аналитическое продолжение делается с $\omega_0 > 0$.

Уравнение (1) справедливо лишь в указанной выше области. Плотности заряда и тока ρ, \mathbf{j}_1 связаны с функцией Грина \hat{G}_p^1 соотношениями

$$\mathbf{j}_1 = -\frac{iep}{\pi} T \sum_{\omega_n} \int \frac{d\Omega_p}{4\pi} \left(\mathbf{p} \hat{G}_p^1 \right)_{11}, \quad (2)$$

$$\rho = -e\nu \left\{ 2e\varphi + i\pi T \sum_{\omega_n} \int \frac{d\Omega_p}{4\pi} \text{Sp} \hat{G}_p^1 \right\},$$

где $\nu = mp/2\pi^2$ — плотность состояний на поверхности Ферми. Решение системы уравнений (1) можно представить в виде

$$\hat{G}_p^1 = B_p \tau_Z + D_p, \quad (3)$$

где величины B_p, D_p являются функциями импульса \mathbf{p} на поверхности Ферми и координаты \mathbf{r} . Функции B_p, D_p удовлетворяют системе уравнений

$$\begin{aligned} \left(\mathbf{v} \frac{\partial B_p}{\partial \mathbf{r}} \right) + \omega_0 D_p + \frac{1}{\tau} D_p - \\ - nv \int d\Omega_{p_1} \sigma_{pp_1} D_{p_1} = 2ie\varphi, \end{aligned} \quad (4)$$

$$\begin{aligned} \left(\mathbf{v} \frac{\partial D_p}{\partial \mathbf{r}} \right) + \omega_0 B_p + \frac{1}{\tau} B_p - nv \int d\Omega_{p_1} \sigma_{pp_1} B_{p_1} = \\ = -2ie(\mathbf{v} \cdot \mathbf{A}_1). \end{aligned}$$

Формальное решение второго уравнения (4) можно записать в виде

$$\begin{aligned} B_p = - \left[\omega_0 + \frac{1}{\tau} - nv \int d\Omega_{p_1} \sigma_{pp_1} \right]^{-1} \times \\ \times \left(2ie(\mathbf{v}_1 \cdot \mathbf{A}_1) + \left(\mathbf{v}_1 \frac{\partial D_{p_1}}{\partial \mathbf{r}} \right) \right). \end{aligned} \quad (5)$$

Подставляя выражение (5) для функции B_p в первое из уравнений (4), получим одно уравнение для величины D_p :

$$\begin{aligned} \hat{L} D_p = 2ie \left\{ \varphi + \left(\mathbf{v} \frac{\partial}{\partial \mathbf{r}} \right) \times \right. \\ \left. \times \left[\omega_0 + \frac{1}{\tau} - nv \int d\Omega_{p_1} \sigma_{pp_1} \right]^{-1} (\mathbf{v}_1 \cdot \mathbf{A}_1) \right\}, \end{aligned} \quad (6)$$

где оператор \hat{L} определяется выражением

$$\begin{aligned} \hat{L} = \omega_0 + \frac{1}{\tau} - nv \int d\Omega_{p_1} \sigma_{pp_1} - \\ - \left(\mathbf{v} \frac{\partial}{\partial \mathbf{r}} \right) \left[\omega_0 + \frac{1}{\tau} - nv \int d\Omega_{p_1} \sigma_{pp_1} \right]^{-1} \left(\mathbf{v}_1 \frac{\partial}{\partial \mathbf{r}} \right). \end{aligned} \quad (7)$$

Сумма по частоте ω_n в уравнениях (2) вычисляется очень просто и в результате находим

$$\mathbf{j}_1 = -\frac{iep\omega_0}{2} \int \frac{d\Omega_p}{4\pi} (\mathbf{p} B_p), \quad (8)$$

$$\rho = -e\nu \left\{ 2e\varphi + i\omega_0 \int \frac{d\Omega_p}{4\pi} D_p \right\}$$

Аналитическое продолжение в уравнениях (5), (6), (8) сводится к замене $\omega_0 \rightarrow -i\omega$.

Уравнения (8) для плотности тока и заряда следует дополнить уравнениями Максвелла:

$$\begin{aligned} \mathbf{E} = -\frac{\partial \varphi}{\partial \mathbf{r}} - \frac{\partial \mathbf{A}}{\partial t}, \quad \mathbf{H} = \text{rot } \mathbf{A}, \\ \text{rot } \mathbf{H} = 4\pi \mathbf{j} + \frac{\partial \mathbf{E}}{\partial t}, \quad \text{rot } \mathbf{E} = -\frac{\partial \mathbf{H}}{\partial t}. \end{aligned} \quad (9)$$

Теперь можно сформулировать задачу на собственные значения для поверхностных (и объемных) плазмонов в общем случае.

Частота плазмона ω есть решение системы уравнений (8), (9) с отходящей электромагнитной волной на бесконечности. Эта задача не является самосопряженной, и частота ω во всяком случае будет комплексной. Однако фактически, как будет показано ниже, радиационная ширина в экспериментально интересной области размеров кластера мала и пропорциональна $(R\omega_p/c)^3$ (ω_p — частота плазмона, c — скорость света). Большая часть ширины плазмона связана с рассеянием электронов на дефектах кристаллической структуры или на примесях. Для получения обратных операторов в уравнениях (5), (7) следует использовать граничные условия. Это могут быть зеркальные, диффузные граничные условия или комбинация из них.

3. ПОВЕРХНОСТНЫЙ ПЛАЗМОН В КЛАСТЕРЕ

Существуют два типа решений задачи на собственные значения для частицы малого размера. Доминирующий член в одном из них есть скалярный потенциал φ , а во втором — векторный потенциал \mathbf{A}_1 .

Рассмотрим первое семейство. В главном приближении по параметру $(R\omega_p/c)^2$ внутри частицы и вне ее на расстояниях много меньших c/ω_p можно пренебречь векторным потенциалом \mathbf{A}_1 . Скалярный потенциал φ есть решение уравнения

$$\begin{aligned} \frac{\partial^2 \varphi}{\partial \mathbf{r}^2} &= \frac{8\pi\nu e^2}{\omega + i/\tau_{tr}} \times \\ &\times \left\langle \left[\omega + \frac{i}{\tau} - inv \int d\Omega_{p_1} \sigma_{pp_1} + \right. \right. \\ &+ \left(\mathbf{v} \frac{\partial}{\partial \mathbf{r}} \right) \left(\omega + \frac{i}{\tau} - inv \int d\Omega_{p_1} \sigma_{pp_1} \right)^{-1} \left(\mathbf{v}_1 \frac{\partial}{\partial \mathbf{r}} \right) \left. \right]^{-1} \times \\ &\times \left. \left(\mathbf{v}_1 \frac{\partial}{\partial \mathbf{r}} \right) \left(\mathbf{v}_1 \frac{\partial}{\partial \mathbf{r}} \right) \varphi \right\rangle \quad (10) \end{aligned}$$

внутри частицы (τ_{tr} — транспортное время рассеяния), и вне частицы скалярный потенциал φ есть решение уравнения

$$\frac{\partial^2 \varphi}{\partial \mathbf{r}^2} = 0. \quad (11)$$

Подобным же образом может быть рассмотрена вторая (токовая) ветвь плазмона.

Рассмотрим сферически-симметричный кластер радиуса R . Вне кластера решение уравнения (11) есть

$$\varphi_{ext} = \frac{C}{r^{l+1}} Y_l^m e^{-i\omega t}, \quad r > R, \quad r = |\mathbf{r}|, \quad (12)$$

где C — некоторая константа, Y_l^m — сферические функции.

Внутри кластера функция φ есть сумма двух членов

$$\varphi(\mathbf{r}, t) = Y_l^m (\tilde{E} r^l + \phi) e^{-i\omega t}. \quad (13)$$

Функция ϕ в уравнении (13) экспоненциально затухает в глубь кластера и вблизи поверхности может быть выбрана в виде

$$\phi = \hat{\phi} \left(\frac{R}{r} \right)^\gamma e^{-\kappa(R-r)}. \quad (14)$$

Параметр κ в уравнении (14) есть обратная динамическая глубина экранирования. Оба параметра, κ, γ , должны быть найдены из уравнения (10) и граничных условий к нему: скалярный потенциал есть непрерывная функция на поверхности кластера, производная по нормали к поверхности непрерывна, и $\mathbf{n} \cdot \mathbf{j}_1 = 0$ на поверхности кластера (\mathbf{n} — вектор нормали к поверхности).

Ниже предположим, что кластер достаточно большой и параметр $\kappa R \gg 1$. В главном приближении частота поверхностного плазмона не зависит от размера кластера [2, 3]. Первая часть нашей задачи — найти поправочный член, пропорциональный $(\kappa R)^{-1}$. Для того чтобы это сделать, введем оператор \hat{L}_0 нулевого приближения:

$$\begin{aligned} \hat{L}_0 &= \omega + \frac{i}{\tau} - inv \int d\Omega_{p_1} \sigma_{pp_1} + \\ &+ \kappa^2 (\mathbf{v} \cdot \mathbf{e}_\rho) (\omega + \frac{i}{\tau} - inv \int d\Omega_{p_1} \sigma_{pp_1})^{-1} (\mathbf{v}_1 \cdot \mathbf{e}_\rho), \quad (15) \end{aligned}$$

где $\mathbf{e}_\rho = \mathbf{r}/r$ — единичный вектор вдоль \mathbf{r} . Из уравнений (10), (14) находим уравнение для функции ϕ с учетом главного и первого поправочного членов по параметру $(\kappa R)^{-1}$:

$$\begin{aligned} \left[\kappa^2 - \frac{2\kappa(\gamma-1)}{r} \right] \phi &= \frac{8\pi\nu e^2}{\omega + i/\tau_{tr}} \left\langle \hat{L}_0 - \right. \\ &- \frac{2\kappa\gamma}{r} (\mathbf{v} \cdot \mathbf{e}_\rho) \left(\omega + \frac{i}{\tau} - inv \int d\Omega_{p_1} \sigma_{pp_1} \right)^{-1} (\mathbf{v}_1 \cdot \mathbf{e}_\rho) + \\ &+ \frac{\kappa(\mathbf{v} \cdot \mathbf{e}_\theta)}{r} \left(\omega + \frac{i}{\tau} - inv \int d\Omega_{p_1} \sigma_{pp_1} \right)^{-1} (\mathbf{v} \cdot \mathbf{e}_\theta) + \\ &+ \left. \frac{\kappa(\mathbf{v} \cdot \mathbf{e}_\varphi)}{r} \left(\omega + \frac{i}{\tau} - inv \int d\Omega_{p_1} \sigma_{pp_1} \right)^{-1} (\mathbf{v} \cdot \mathbf{e}_\varphi) \right]^{-1} \times \\ &\times \left[(\mathbf{v}_1 \cdot \mathbf{e}_\rho)^2 \left(\kappa^2 - \frac{2\kappa(\gamma+1/2)}{r} \right) + \frac{\kappa v^2}{r} \right] \phi, \quad (16) \end{aligned}$$

где угловые скобки означают усреднение по углам вектора \mathbf{p} .

Главный член в уравнении (16) определяет величину κ :

$$1 = \frac{3\omega_p^2}{\omega + i/\tau_{tr}} \langle \hat{L}_0^{-1} \cos^2 \theta_p \rangle, \quad (17)$$

где $\omega_p^2 = 8\pi\nu e^2 v^2 / 3$ — частота плазменных колебаний.

Поправочный член дает уравнение для величины γ :

$$\begin{aligned} 1 &= \frac{\omega_p^2}{\omega + i/\tau_{tr}} \langle \hat{L}_0^{-1} \rangle + \frac{2(\gamma+1/2)\omega_p^2 \kappa^2 v^2}{(\omega + i/\tau_{tr})^2} \times \\ &\times \langle \hat{L}_0^{-1} \cos^2 \theta_p \hat{L}_0^{-1} \cos^2 \theta_{p1} \rangle - \\ &- \frac{\omega_p^2 \kappa^2 v^2}{(\omega + i/\tau_{tr})^2} \langle \hat{L}_0^{-1} \hat{L}_0^{-1} 1 \rangle. \quad (18) \end{aligned}$$

Ниже покажем, что величина γ оказывается численно большой. Поэтому на зависимости частоты

поверхностного плазмона от радиуса кластера возникает обширное плато. Для описания этого явления применим интерполяционную процедуру. Предположим, что при значениях L порядка единицы ($L = 1, 2$) функция ϕ (см. уравнение (13)) удовлетворяет соотношению

$$\phi'' + \frac{2\gamma}{r}\phi' - \kappa^2\phi = 0, \quad (19)$$

где параметры κ, γ определяются уравнениями (17), (18), а штрих означает дифференцирование по r . Решение уравнения (19) выражается через функцию Бесселя:

$$\phi = \tilde{C}(\kappa r)^{1/2-\gamma} I_{\gamma-1/2}(\kappa r). \quad (20)$$

Из формул (12), (13), (20) находим два граничных условия (условие непрерывности φ и ее нормальной производной при $r = R$):

$$\frac{C}{R^{l+1}} = \tilde{C}(\kappa R)^{1/2-\gamma} I_{\gamma-1/2}(\kappa R) + \tilde{E}R^l, \quad (21)$$

$$\begin{aligned} -\frac{C(l+1)}{R^{l+1}} &= \tilde{C} \left[\left(\frac{1}{2} - \gamma \right) (\kappa R)^{1/2-\gamma} \times \right. \\ &\quad \times I_{\gamma-1/2}(\kappa R) + (\kappa R)^{1/2-\gamma} \times \\ &\quad \times \left. \left((\kappa R) I_{\gamma+1/2}(\kappa R) + (\gamma-1/2) I_{\gamma-1/2}(\kappa R) \right) \right] + \tilde{E}lR^l. \end{aligned}$$

Исключая константу C из системы уравнений (21), находим одно из уравнений для коэффициентов \tilde{C}, \tilde{E} :

$$\begin{aligned} \tilde{E}(2l+1)R^l + \tilde{C}(\kappa R)^{1/2-\gamma} \times \\ \times \left\{ (l+1)I_{\gamma-1/2}(\kappa R) + (\kappa R)I_{\gamma+1/2}(\kappa R) \right\} = 0. \quad (22) \end{aligned}$$

Уравнение (8) для плотности тока \mathbf{j}_1 с помощью формул (5), (6) приводится к виду

$$\begin{aligned} \mathbf{j}_1 = -\frac{e^2 p \omega}{\pi^2(\omega + i/\tau_{tr})} \left\{ \frac{pv}{3} \mathbf{A}_1 + \right. \\ \left. + \left\langle \mathbf{p} \left(\mathbf{v} \frac{\partial}{\partial \mathbf{r}} \right) \hat{L}_{p_1}^{-1} \left(\varphi + \frac{i \left(\mathbf{v}_1 \frac{\partial}{\partial \mathbf{r}} \right) (\mathbf{v}_1 \cdot \mathbf{A}_1)}{\omega + i/\tau_{tr}} \right) \right\rangle \right\}. \quad (23) \end{aligned}$$

В рассматриваемом случае векторный потенциал \mathbf{A}_1 мал и им можно пренебречь. В результате услов-

вие обращения в нуль нормальной компоненты тока на поверхности кластера принимает вид

$$\begin{aligned} \left\langle \mathbf{n} \cdot \mathbf{p} \left(\mathbf{v} \frac{\partial}{\partial \mathbf{r}} \right) \hat{L}_{p_1}^{-1} \left(\tilde{E}r^l + \tilde{C}(\kappa r)^{1/2-\gamma} I_{\gamma-1/2}(\kappa r) \right) \times \right. \\ \left. \times Y_l^m(\mathbf{r}/r) \right\rangle_S = 0. \quad (24) \end{aligned}$$

В главном приближении действие оператора $\partial/\partial r$ на функцию ϕ сводится к умножению ее на параметр κ , и в этом приближении из формул (17), (22), (24) находим известный результат для частоты поверхностного плазмона:

$$\omega \left(\omega + \frac{i}{\tau_{tr}} \right) = \omega_p^2 \frac{l}{2l+1}. \quad (25)$$

Вернемся теперь к исследованию зависимости частоты поверхностного плазмона от размера кластера. В рассматриваемом приближении уравнение (24) можно представить в виде

$$\begin{aligned} R^{l-1} \frac{\tilde{E}l}{3\omega} + \tilde{C} \left\langle \cos^2 \theta_p \times \right. \\ \times \frac{\partial}{\partial r} \left[\omega + \frac{i}{\tau} - i n v \int d\Omega_{p_1} \sigma_{pp_1} + \right. \\ \left. + \frac{v^2}{\omega + i/\tau_{tr}} \left(\cos^2 \theta_p \left(\frac{\partial^2}{\partial r^2} - \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \right) + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \right) \right]^{-1} \times \\ \left. \times (\kappa r)^{1/2-\gamma} I_{\gamma-1/2}(\kappa r) \right\rangle_{r=R} = 0. \quad (26) \end{aligned}$$

Решая уравнение (26), получим

$$\begin{aligned} R^l \frac{\tilde{E}l}{3} = \tilde{C} \int_0^1 dZ Z^2 \sum_{M=1}^{\infty} 2MR^{2M} \times \\ \times \sum_{m=0}^{M-1} C_m (-1)^{M-m} \left(\frac{\omega(\omega + i/\tau_{tr})}{4v^2 Z^2} \right)^{M-m} \times \\ \times \frac{\Gamma(m+1)\Gamma(m+(1/2)Z^2)}{\Gamma(M+1)\Gamma(M+(1/2)Z^2)}. \quad (27) \end{aligned}$$

Коэффициенты C_m в формуле (27) — коэффициенты разложения функции Бесселя в ряд Тейлора:

$$(\kappa r)^{1/2-\gamma} I_{\gamma-1/2}(\kappa r) = \sum_{m=0}^{\infty} C_m r^{2m}, \quad (28)$$

$$C_m = \frac{1}{m! \Gamma(m+\gamma+1/2)} \left(\frac{\kappa}{2} \right)^{2m} \cdot 2^{-\gamma+1/2}.$$

Условие разрешимости системы уравнений (22), (27) определяет спектр поверхностных плазмонов:

$$\begin{aligned}
 & -\frac{l}{3(2l+1)}(\kappa R)^{1/2-\gamma} \times \\
 & \times \left\{ (l+1)I_{\gamma-1/2}(\kappa r) + (\kappa R)I_{\gamma+1/2}(\kappa R) \right\} = \\
 & = \int_0^1 dZ Z^2 \sum_{M=1}^{\infty} 2MR^{2M} \times \\
 & \times \sum_{m=0}^{M-1} C_m (-1)^{M-m} \left(\frac{\omega(\omega+i/\tau_{tr})}{4v^2 Z^2} \right)^{M-m} \times \\
 & \times \frac{\Gamma(m+1)\Gamma(m+(1/2)Z^2)}{\Gamma(M+1)\Gamma(M+(1/2)Z^2)}. \quad (29)
 \end{aligned}$$

Величина κ в формуле (29) находится из уравнения (17). Обычно ширина плазмона мала по сравнению с его частотой и ею можно пренебречь при вычислении величины κ . С этой точностью находим из уравнения (17)

$$1 = \frac{3\omega_p^2}{\kappa^2 v^2} \left[1 - \frac{\omega}{\kappa v} \operatorname{arctg} \left(\frac{\kappa v}{\omega} \right) \right]. \quad (30)$$

Для определения величины γ при $R \rightarrow \infty$ необходимо найти среднее значение операторов в формуле (18):

$$\langle \hat{L}_0^{-1} 1 \rangle = \int_0^1 \frac{dZ \omega}{\omega^2 + \kappa^2 v^2 Z^2} = \frac{1}{\kappa v} \operatorname{arctg} \left(\frac{\kappa v}{\omega} \right), \quad (31)$$

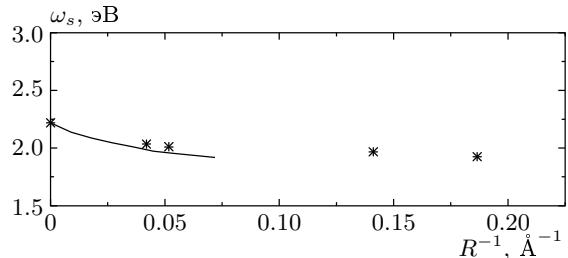
$$\begin{aligned}
 \langle \hat{L}_0^{-1} \cos^2 \theta_p \rangle &= \int_0^1 \frac{dZ Z^2 \omega}{\omega^2 + \kappa^2 v^2 Z^2} = \\
 &= \frac{\omega}{\kappa^2 v^2} \left[1 - \frac{\omega}{\kappa v} \operatorname{arctg} \left(\frac{\kappa v}{\omega} \right) \right],
 \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
 \langle \hat{L}_0^{-1} \cos^2 \theta_p \hat{L}_0^{-1} \cos^2 \theta_{p1} \rangle &= \int_0^1 \frac{dZ \omega^2 Z^4}{(\omega^2 + \kappa^2 v^2 Z^2)^2} = \\
 &= \frac{\omega^2}{(\kappa v)^4} \left[1 + \frac{\omega^2}{2(\omega^2 + \kappa^2 v^2)} - \frac{3}{2} \frac{\omega}{\kappa v} \operatorname{arctg} \left(\frac{\kappa v}{\omega} \right) \right].
 \end{aligned}$$

При $R \rightarrow \infty$ из уравнений (18), (25), (31) находим значение параметра γ при $l = 1$:

$$\gamma = 9.04. \quad (32)$$

В рамках теории возмущений, пока сдвиг частоты поверхностного плазмона мал, вместо уравнения



Зависимость частоты поверхностного плазмона ω_s от радиуса кластера R . Крестики — экспериментальные данные работы [2]. Сплошная линия — теоретическая зависимость (29)

(25) находим следующее выражение для частоты поверхностного плазмона:

$$\begin{aligned}
 \omega \left(\omega + \frac{i}{\tau_{tr}} \right) &= \\
 &= \omega_p^2 \frac{l}{2l+1} \frac{1 - \frac{\gamma - (l+1)}{\kappa R}}{1 + \frac{3}{\kappa R} \left[1 - \left(\frac{\omega_p^2}{\omega^2} - \frac{\kappa^2 v^2}{3\omega^2} \right) \right]}. \quad (33)
 \end{aligned}$$

Из-за большого значения величины γ область применимости уравнения (33) оказывается сильно ограниченной снизу. Использование интерполяционных формул (29), (30), (32) позволяет расширить эту область вплоть до значений R порядка 10 Å.

На рисунке приведена зависимость частоты плазменных колебаний для Na, следующая из формул (29), (30), (32), и экспериментальные данные работы [2]. В формулах (29), (30), (32) нет подгоночных параметров. Для скорости на поверхности Ферми и плотности Na были использованы табличные значения:

$$\begin{aligned}
 v &= 1.07 \cdot 10^8 \text{ см/с,} \\
 \text{плотность} &= 2.65 \cdot 10^{22} \text{ частиц/см}^3.
 \end{aligned} \quad (34)$$

В области $R < 12 \text{ \AA}$ нельзя пренебречь зависимостью параметра γ от размера кластера. В этой области проблема сводится к решению уравнения (10) с необходимой точностью для потенциала ϕ .

4. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Предложен метод, позволяющий исследовать зависимость частоты поверхностного плазмона от формы и размера кластера. Показано, что при рассмотрении задачи возникает большой численный параметр γ , входящий в зависимость потенциала от

координат. В результате на зависимости частоты плазмона от радиуса кластера, $\omega = \omega(R)$, возникает обширное плато. По-видимому, при размере кластера порядка нескольких ангстрем существенным станет профиль потенциального барьера вне кластера. Отметим также, что экспериментальная ширина поверхностного плазмона слабо зависит от размера кластера [2]. В нашем подходе ширина плазмона связана с рассеянием электронов на примесях или дефектах кристаллической решетки. Зависимость затухания от размера кластера связана главным образом с тем, что частота плазмона входит во все выражения лишь в комбинации $\omega(\omega + i/\tau_{tr})$.

Автор выражает благодарность В. В. Кресину и В. З. Кресину за активное обсуждение и ценные замечания.

Работа выполнена при финансовой поддержке CRDF (USA) (грант № RP1-2251), а также USA National Science Foundation.

ЛИТЕРАТУРА

1. V. V. Kresin, Phys. Rep. **220**, 1 (1992).
2. C. Brechignac and J. P. Connerade, J. Phys. B **27**, 3795 (1994).
3. G. Mie, Ann. der Phys. **25**, 377 (1908).
4. A. A. Lushnikov and A. J. Simonov, Z. Phys. **270**, 17 (1974).
5. U. Kreibig and M. Vollmer, *Optical Properties of Metal Clusters*, Springer, Berlin (1995).
6. A. I. Larkin and Yu. N. Ovchinnikov, J. Low Temp. Phys. **10**, 407 (1973).