ЖЭТФ, 2025, том 167, вып. 4, стр. 457–468 © 2025

УЛУЧШЕНИЕ ОПТИЧЕСКОГО ПОГЛОЩЕНИЯ КОГЕРЕНТНОГО ИЗЛУЧЕНИЯ В СРЕДЕ ПУТЕМ ДОПИРОВАНИЯ ЕЕ НАНОАНТЕННАМИ: ЧИСЛЕННЫЙ АНАЛИЗ

К. В. Жуковский [a,c*], ***И. Папп*** [b,c]

[a] *Московский государственный университет им. М. В. Ломоносова, физический факультет*
119991, Москва, Россия

[b] *HUN-REN Centre for Energy Research*
1121, Budapest, Hungary

[c] *Wigner Research Centre for Physics*
1121, Budapest, Hungary

Поступила в редакцию 14 апреля 2024 г.,
после переработки 10 июля 2024 г.
Принята к публикации 12 августа 2024 г.

Исследуется поглощение энергии в среде с примесью наночастиц золота при облучении инфракрасными лазерными импульсами интенсивностью 10^{15}–10^{17} Вт/см^2. Проводится численное моделирование взаимодействия излучения с наночастицами различной формы; наночастицы играют роль резонирующих наноантенн. Рассматривается кинетическая модель, внедренная с использованием численного программного обеспечения EPOCH. С его помощью моделируется и изучается отклик допирующих наночастиц на короткие импульсы инфракрасного лазерного излучения. Рассчитываются и исследуются характеристики поглощения среды с наночастицами, импульс и энергия получающихся при ионизации протонов, электронов и тяжелых ионов золота. С помощью специально разработанного программного обеспечения проводится сравнительный анализ энергии продуктов ионизации в присутствии наноантенн различных форм и размеров с целью определить условия, при которых происходят максимальное поглощение энергии из волны и повышение энергии получающихся ионов. Исследуется реакция наноантенн разных размеров квадрупольной, дипольной и сферической форм. Изучается динамика процесса ионизации среды при прохождении электромагнитного импульса и его взаимодействии с наноантенной.

DOI: 10.31857/S0044451025040017

1. ВВЕДЕНИЕ

В последнее время большое внимание уделяется развитию нанотехнологий одновременно с технологическим прогрессом и развитием лазерной техники. Исследования процессов взаимодействия излучения с веществом и его ионизации проводились, в частности, в контексте наноплазмоники [1,2], где большая роль уделяется процессам поглощения энергии волны при облучении короткими импульсами света. Было показано, что использование примеси резонирующих наночастиц в среде позволяет улучшить поглощение энергии из волны; при этом наноантенны могут выдержать импульсы света интенсивностью более 10^{12} Вт/см^2 [3]. Стабильность наночастиц на протяжении всего времени поглощения импульса является отдельным вопросом. Не менее интересным представляется исследование резонансных свойств самих наноантенн и улучшения поглощения в среде при их использовании в качестве примеси [4, 5]. Для подобных исследований применяется динамическая модель релятивистских столкновений с учетом влияния поля лазерного импульса (Laser Wake Field Acceleration, LWFA) [6]. Длительность лазерных импульсов облучения составляет менее пикосекунды, что соответствует длительности импульсов лазеров на свободных электронах (ЛСЭ) в рентгеновском и ультрафиолетовом диапазонах [7–12]. Применение ЛСЭ для подобных исследований находится на стадии проработки. Ионизи-

* E-mail: zhukovsk@physics.msu.ru

рующее излучение не обязательно должно быть в рентгеновском диапазоне. Например, в [13, 14] экспериментально исследовалось влияние интенсивности лазерного излучения на энергию получающихся протонов; при этом использовалось излучение в видимом и инфракрасном диапазоне и различные мишени. В проекте NIF-ARC [15, 16] получены, например, протоны с энергией более 30 МэВ при использовании излучения интенсивностью до 10^{18} Вт/см^2. Интенсивность импульсов света, очевидно, определяет энергию получающихся при ионизации частиц. Кроме того, возможно повышение эффективности процесса ионизации при использовании резонирующих примесей. Идея об увеличении энергии поглощения в среде при использовании наноантенн была выдвинута, например, в работах [6, 17, 18] и др. Эффективность использования резонирующих наночастиц в различных условиях и свойства самих наноантенн пока мало исследованы.

Настоящая работа направлена на исследование влияния примеси резонирующих наноантенн в среде на энергию и импульс протонов, электронов и ионов, получающихся в процессе ионизации среды. В частности, нами исследуются электронная плотность и ее динамика внутри и около наноантенн и динамика переходных явлений в присутствии наноантенн различной формы. Конструкция наноантенн, резонирующих на частотах оптического диапазона, где электроны зоны проводимости в металлах ведут себя как сильносвязанная плазма [6, 19, 20], предполагает преимущественно дипольную форму. В цилиндрической металлической антенне в виде стержня длиной L и радиусом R свет с длиной волны λ при случайном взаимодействии с электронами смещает последние к концам стержня и формирует плазмонный поверхностный заряд, распространяющийся как волна [6]. В различных проектах используются разные наноантенны, замешанные произвольным образом или упорядоченные в пластиковом диэлектрике. Распространение импульса света в среде характеризуется функцией диэлектрической проницаемости $\epsilon(\lambda)$ с предельным значением на бесконечности ϵ_{inf} [20]. Часто используют золото и серебро с высокими проводящими свойствами. Для золота, например, получаем значения $\epsilon_{inf} = 11$ и $\lambda_p = 138$ нм; для серебра имеем значение $\epsilon_{inf} = 3.5$, которое значительно меньше того, что получается для золота, но плазменная длина волны при этом почти не меняется: $\lambda_p = 135$ нм [19]. Скорость распространения света c_s в среде из плотного диэлектрика с диэлектрической проницаемостью ϵ_s меньше скорости света c в вакууме: $c_s = c/\sqrt{\epsilon_s}$. Соответствующий показатель преломления тогда равен $n = \sqrt{\epsilon_s}$. В оптическом диапазоне можно в целом применять концепцию дипольной антенны, представляющей собой штырь длиной в половину длины волны излучения: $L = \lambda/2$. В реальности наноантенны имеют оптимальную длину менее половины длины волны излучения, что определяется отличием эффективной резонансной длины волны λ_{eff} от длины волны λ. Некоторые оценки для эффективной резонансной длины волны для простого диполя в среде даны, например, в [19]; в частности, в [19] представлена приближенная эмпирическая формула для λ_{eff}, имеющая вид

$$\lambda_{eff} = 2\pi R\left[13.7 - 0.12\left(\frac{\epsilon_{inf}}{\epsilon_s} + 141\right) - \right.$$
$$\left. - \frac{2}{\pi} + \frac{\lambda}{\lambda_p} 0.12 \frac{\sqrt{\epsilon_{inf} + 141\epsilon_s}}{\epsilon_s}\right]. \quad (1)$$

В настоящей работе мы рассматриваем наночастицы диаметром приблизительно 25 нм, как предложено в предыдущих исследованиях по теме [6, 17, 18] и др. При этом получаем оценку эффективной длины волны в вакууме $\lambda_{eff} = 266$ нм, что, в свою очередь, дает оценку длины дипольной антенны $L = \lambda_{eff}/2 = 133$ нм для диполя с выбранным радиусом 12.5 нм. Однако резонирующие наночастицы замешаны в плотном веществе полимерного типа, диметакрилат уретан (UDMA), показатель преломления у которого отличен от единицы: $n = 1.53$. С учетом этого получаем для резонансной длины диполя диаметром около 25 нм в такой среде оценочное значение $L = \lambda_{eff}/2 \approx 85$ нм.

В настоящем исследовании численно моделируется динамика электронов в наноантеннах при прохождении импульса света и их реакция на облучение для различных форм и размеров наноантенн. Целью работы является нахождение параметров наноантенн с максимально возможным резонансным эффектом для наилучшего поглощения энергии их волны. Изучается динамика зарядов в наноантеннах в плотной среде при облучении импульсом лазерной волны линейной поляризации. При этом мы используем программное обеспечение EPOCH, в котором реализована кинетическая модель наночастицы в ячейке (Particle in Cell, PIC). При облучении электромагнитным импульсом металлической наноантенны с размерами, сравнимыми с эффективной длиной волны падающего света, в ней резонируют когерентные колебания электрического поля. Возникает локализованный поверхностный плазмон (Localized Surface Plasmon, LSP). Колебания элек-

тронов проводимости в металле антенны и кулоновское взаимодействие с ядрами порождает силу, смещающую электронное облако из положения равновесия; появляются электронные колебания в стержне. На частоту этих колебаний влияют масса электрона, плотность электронов и распределение заряда. Появление плазмона LSP проявляется в двух существенных эффектах: усилении электрического поля вблизи поверхности антенны и увеличении оптического поглощения среды на частоте плазменного резонанса. Так, в работе [21] исследовалось усиление поля в среде вокруг резонирующей дипольной наноантенны; были получены ценные результаты, которые, однако, зависят от геометрии наноантенны [22, 23]. Характерный масштаб наноантенны можно оценить по формуле (1).

В следующих разделах мы исследуем влияние форм и размеров наноантенны в диапазоне 25–150 нм, имея в виду также результаты в [21] для дипольной вертикальной наноантенны. В отличие от работ [6, 17, 21] и других исследований, мы исследуем различные положения наноантенны: не только идеально по вектору поляризации волны излучения, но и перпендикулярно плоскости поляризации, в том числе вдоль направления распространения электромагнитного импульса. Для неупорядоченного положения наночастиц в среде имеет место сочетание всех трех случаев. Таким образом, можно получить достоверную оценку влияния дипольной наноантенны в общем случае. Кроме того, нами рассматриваются и наноантенны сферической формы, а также квадрупольные антенны. Выбор двух последних форм продиктован техническими возможностями изготовления и легирования ими полимерной среды.

2. МОДЕЛИРОВАНИЕ И МЕТОДОЛОГИЯ ИССЛЕДОВАНИЯ

Для теоретического исследования используем кинетическую модель, успешно примененную ранее, например, в [17,18] и других работах. Теоретические исследования плазмонных явлений в среде с примесями обычно проводят методом численного моделирования и решения уравнений Максвелла с использованием методов конечных элементов или конечных разностей во временной области. Хотя эти методы обеспечивают эффективность вычислений, некоторые важные явления могут при этом быть упущены либо учтены посредством введения дополнительных эвристических параметров фиттинга. Динамику газа свободных электронов в металле можно изучать косвенно, рассматривая объемную диэлектрическую проницаемость металла в терминах классической диэлектрической функции $\epsilon(\omega)$ газа свободных электронов [19, 20, 22]; электрон-электронные взаимодействия при этом учитываются в эффективной массе электрона. Однако при таком подходе не удается учесть эффект выбивания электронов из металла [24]. При моделировании частиц, напротив, используется плотность числа электронов n_e для случайного распределения электроноподобных псевдочастиц на поверхности металла.

При численном моделировании мы используем метод частиц в ячейках PIC [25], при котором псевдочастицы, представляющие множество реальных частиц, непрерывно движутся в фазовом пространстве, а плотности и токи вычисляются внутри стационарных ячеек решетки. Модель реализована в программном окружении EPOCH [26, 27], которое показало свою эффективность при исследовании динамики электронов в различных задачах, моделировании физики плазмы и эффектов выбивания электронов [28]. В рамках программного обеспечения EPOCH [27] задаются совокупности разных типов физических частиц с использованием меньшего количества псевдочастиц, а поля, генерируемые движением этих псевдочастиц, рассчитываются с использованием метода конечных разностей во временной области на решетке с фиксированным пространственным разрешением. Модель описывает классическое поведение совокупности заряженных частиц на микромасштабе без учета квантовых эффектов. Силы, действующие на псевдочастицы в реализованной модели, зависят от рассчитанных полей; они затем используются для обновления значения скоростей этих псевдочастиц, а скорости, в свою очередь, используются для обновления положений псевдочастиц, которые представляют реальные физические частицы.

Особенностями программы EPOCH является параллельный релятивистский код PIC второго порядка, который мы используем на большом числе процессоров одновременно для ускорения счета. Моделирование в EPOCH требует значительных вычислительных мощностей и времени, а анализ результатов возможен с помощью отдельно установленного специального программного обеспечения. Визуализация результатов требует использования и адаптации к базам данных стороннего программного обеспечения ITT IDL, LLNL VisIt, Mathworks MatLab и др. Сам процесс нетривиален хотя бы в силу отсутствия готового к применению пользователем

программного продукта. Для комплексного анализа лучше всего использовать наиболее продвинутую программу LLNL VisIt, которая, однако, требует доработки и адаптации для чтения файлов с результатами моделирования EPOCH.

При моделировании нами учтены характеристики моделируемого материала — золота — с тремя электронами в его зоне проводимости. Лазерный импульс на длине волны 795 нм имеет линейную поляризацию; мы рассматриваем облучение импульсами интенсивностью $4 \cdot 10^{15}$ Вт/см^2 и $4 \cdot 10^{17}$ Вт/см^2. В среде с показателем преломления $n = 1.5$ период излучения приблизительно равен 4 фс; длительность импульса 100 фс, численное моделирование проводится на решетке в интервале времени, покрывающем всю длительность импульса: 0–120 фс. Таким образом, смоделированный нами процесс прохождения импульса охватывает все время реакции наночастицы. Для импульса излучения применяем сглаживание на 10 фс на обоих концах интервала времени 6–106 фс. При моделировании в рамках EPOCH реализованы алгоритмы ион-электронных столкновений, включая кулоновские столкновения на основе кумулятивного угла рассеяния, как предложено Нанбу и Йонемура [29, 30]. Ионы золота остаются малоподвижными благодаря их большой массе, в то время как электроны направляются к поверхности наноантенн за счет взаимного отталкивания, где их удерживает от выброса поле притяжения положительно заряженных ядер золота. С увеличением интенсивности лазерного излучения золотые наноантенны испытывают некоторое расширение. Электромагнитное поле вызывает резонансные колебания электронов проводимости в металле, что изменяет электрическое поле вокруг наноантенн.

Далее мы проведем сравнительный анализ резонансных характеристик наноантенн различных форм и размеров и определим наиболее перспективные из них с точки зрения поглощения энергии из волны. В частности, мы исследуем резонансные свойства наноантенн разных размеров скрещенной квадрупольной, продолговатой дипольной и сферической форм в виртуальных компьютерных экспериментах.

3. РЕЗОНАНСНЫЕ СВОЙСТВА НАНОАНТЕНН В СРЕДЕ

Если ориентацию диполя в твердом веществе не контролировать на стадии его легирования, то диполи в среде получают произвольную ориентацию. Это приводит к тому, что в большинстве случаев ориентация наноантенн в полимере неидеальна относительно линейно поляризованного электромагнитного лазерного импульса. Насколько это ухудшает поглощение при облучении, мы рассмотрим ниже. В некоторых случаях возможна упорядоченная печать наноантенн в среде. Кроме того, мы рассмотрим некоторые наноантенны симметричных форм, ориентация которых не должна сильно влиять на резонирующие свойства. В частности, рассмотрим квадрупольные скрещенные и сферические наноприсадки и сравним их резонансные свойства в среде, учитывая, что диполь может быть ориентирован не только идеально по поляризации лазерного излучения, но и поперек поляризации и по направлению распространения импульса света. Геометрические размеры присадок в нашем исследовании определяются оценкой для диполя, которая задает характерный масштаб присадки, но не определяет резонансные размеры для исследуемых форм. Мы рассмотрели диполь длиной 85 нм и диаметром 25 нм — размерами, которые следуют из (1); рассмотрены диполи различной толщины и длины в диапазоне $\approx 30\%$ от полученной нами оценки длины 85 нм. Мы также исследовали резонансные свойства квадрупольных наноантенн крестообразной формы длиной 85 нм и толщиной 25 нм, а также сферических наноантенн различного диаметра: 25, 42, 85 и 150 нм. Далее приведены результаты моделирования рассмотренных наноантенн разных форм и размеров в сравнении друг с другом. На основе полученного нами большого массива данных, около 15 ТБ, мы приводим здесь анализ лишь небольшой части, которая проливает свет на резонансное поведение наноантенн в среде, показывает динамику ионизации и усиление поглощения энергии лазерного импульса в присутствии наночастиц золота разных размеров и форм.

Так, на рис. 1 представлена эволюция электрического поля вокруг квадрупольной наноантенны при прохождении лазерного импульса интенсивностью $4 \cdot 10^{15}$ Вт/см^2. Отметим, что при такой интенсивности на протяжении всего лазерного импульса не происходит полного выхода электронов проводимости из антенны. На рис. 1 видно изменение электрического поля при прохождении электромагнитного импульса; представлены «снимки» в начале прохождения импульса, после первой трети его длительности, после 3/4 и в конце импульса. Отметим, как увеличивается напряженность поля вокруг антенны по мере прохождения лазерного импульса. Вокруг квадрупольной наноантенны вырисовывает-

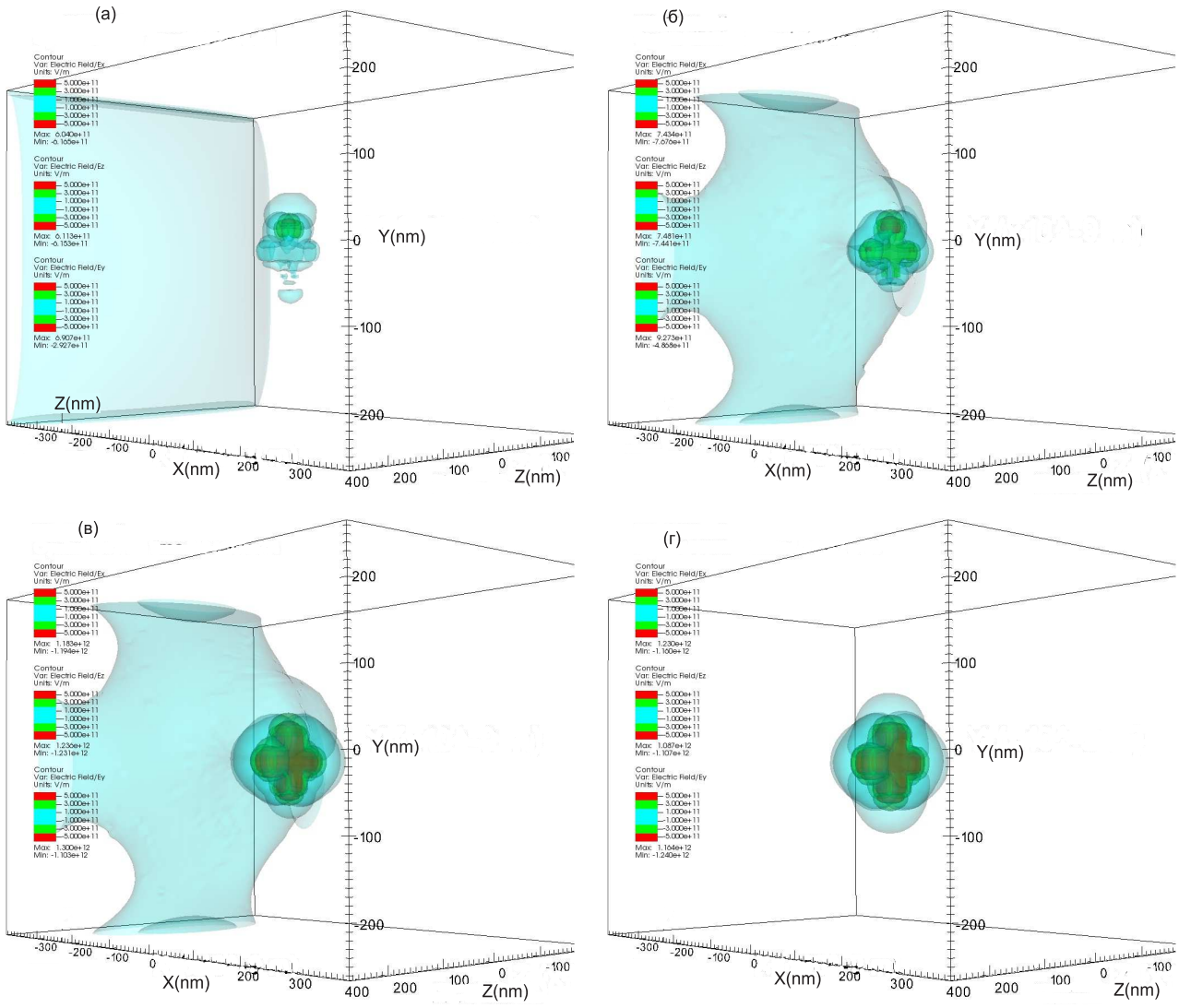

Рис. 1. Эволюция электрического поля E в окрестности квадрупольной наноантенны при прохождении импульса электромагнитной волны интенсивностью $4 \cdot 10^{15}$ Вт/см^2 в начале лазерного импульса (*а*), после половины его длительности (*б*), после $3/4$ импульса (*в*), в конце импульса (*г*)

ся крестообразный контур: синий в начале прохождения лазерного импульса, затем зеленый и потом красный в конце импульса; это показывает увеличение напряженности электрического поля вокруг наноантенны. На рис. 1 одинаковыми цветами показаны все три компоненты вектора напряженности электрического поля. Голубой, зеленый и красный цвета соответствуют контурам значений напряженности поля (см. значения на графике); чем теплее цвет, тем сильнее поле.

Эффект квадрупольной антенны сравним с эффектом дипольной антенны, ориентированной вдоль вектора поляризации электрического поля лазерного импульса (см. [17]); поле диполя при его ориентации поперек вектора поляризации значительно слабее, чем вокруг квадруполя. В результате моделирования поведения системы с наноантенной, направленной вдоль вектора распространения лазерного импульса, выяснилось, что ее резонансные свойства близки к свойствам наноантенны с ориентацией поперек поля и поперек направления распространения волны, поэтому некоторые рисунки мы для краткости не приводим. В ходе анализа результатов для дипольной антенны с ориентациями, отличными от идеальной (по направлению вектора поля в волне), (см. [17, 18]) было установлено, что ее резонансные свойства значительно ухудшаются при отклонении от положения по вектору напряженно-

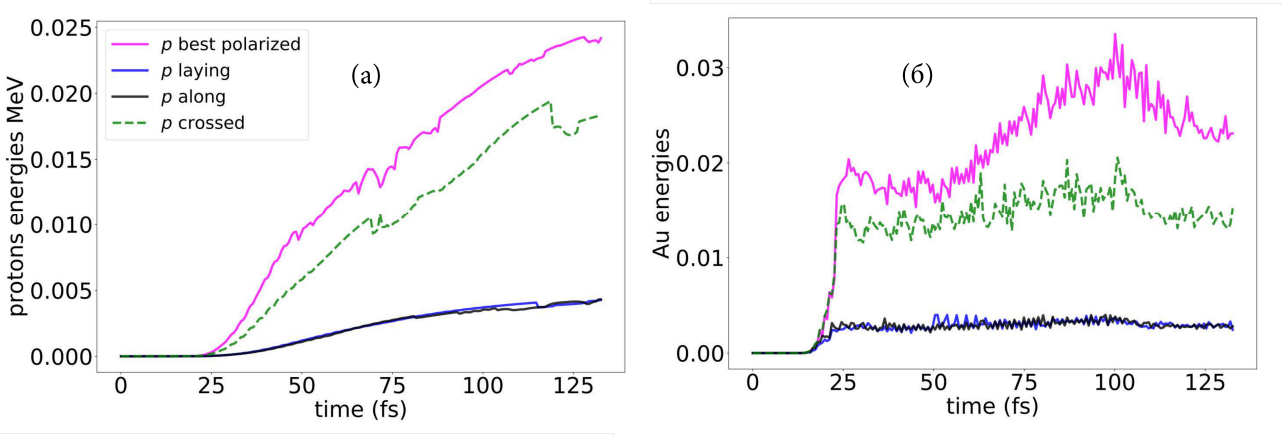

Рис. 2. Эволюция во времени средней энергии всех ионов (*а*) и отдельно ионов золота (*б*) при прохождении лазерного импульса интенсивностью $4 \cdot 10^{15}$ Вт/см^2 при наличии наноантенн различной формы: квадруполь — зеленая штриховая линия, диполь с идеальной ориентацией вдоль вектора поляризации излучения — пурпурная сплошная линия, диполь поперек поля — синяя, диполь по направлению распространения импульса излучения — черная. Размеры стержня диполя и квадруполя 25×85 нм

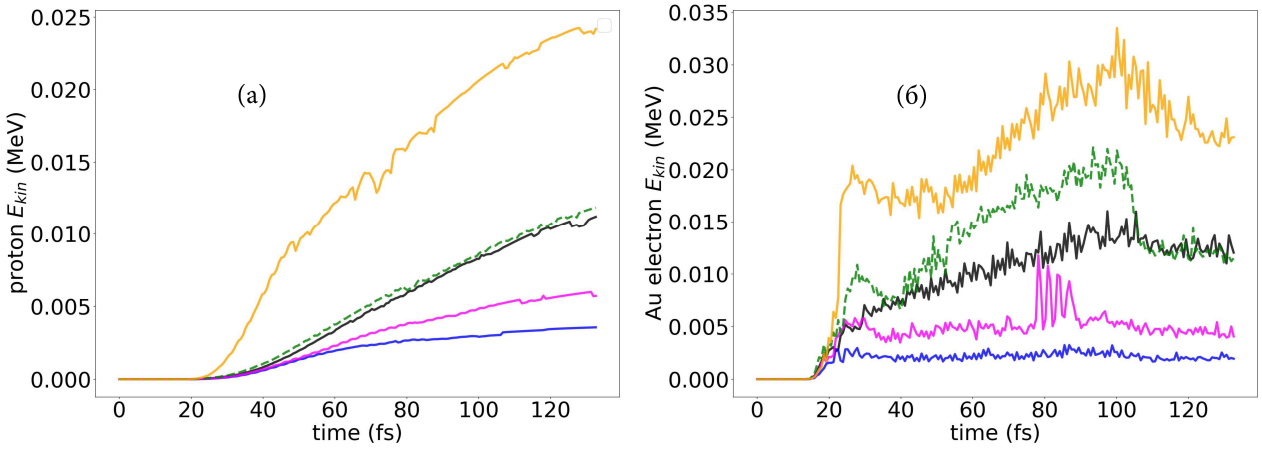

Рис. 3. Эволюция во времени средней энергии всех ионов (*а*) и отдельно ионов золота (*б*) при прохождении лазерного импульса интенсивностью $4 \cdot 10^{15}$ Вт/см^2 при наличии наноантенн сферической формы; диаметры антенн: 150 нм — зеленая штриховая линия, 85 нм — черная сплошная линия, 42.5 нм — пурпурная, 25 нм — синяя; для сравнения показана зависимость для диполя 25×85 нм — бежевая сплошная линия

сти поля волны. В большинстве случаев в реальности будет присутствовать смесь ориентаций, однако, чтобы рассчитать процессы на большой решетке со многими замешанными наночастицами, требуются вычислительные возможности, значительно превосходящие имеющиеся в нашем распоряжении. Ввиду ограниченных вычислительных возможностей, в нашем исследовании моделируется одна наноантенна в ячейке. Сравнение энергии ионов в средах с присадками в виде нанодиполей и наноквадруполей можно провести, учитывая результаты, представленные на рис. 2.

Отметим, что с нанодиполем, идеально ориентированным по вектору поляризации в волне (пурпурная сплошная линия на рис. 2) интенсивностью $4 \cdot 10^{15}$ Вт/см^2, результаты для энергии ионов сравнимы с теми, которые получаются для квадрупольной наноантенны (ср. зеленую штриховую линию с пурпурной сплошной линией на рис. 2). По сравнению с диполем в положении поперек поля (синяя и черная линии на рис. 2), квадруполь дает большее чем на порядок величины поглощение энергии из волны; такое же преимущество получается у квадруполя по сравнению с диполем, ориентированным

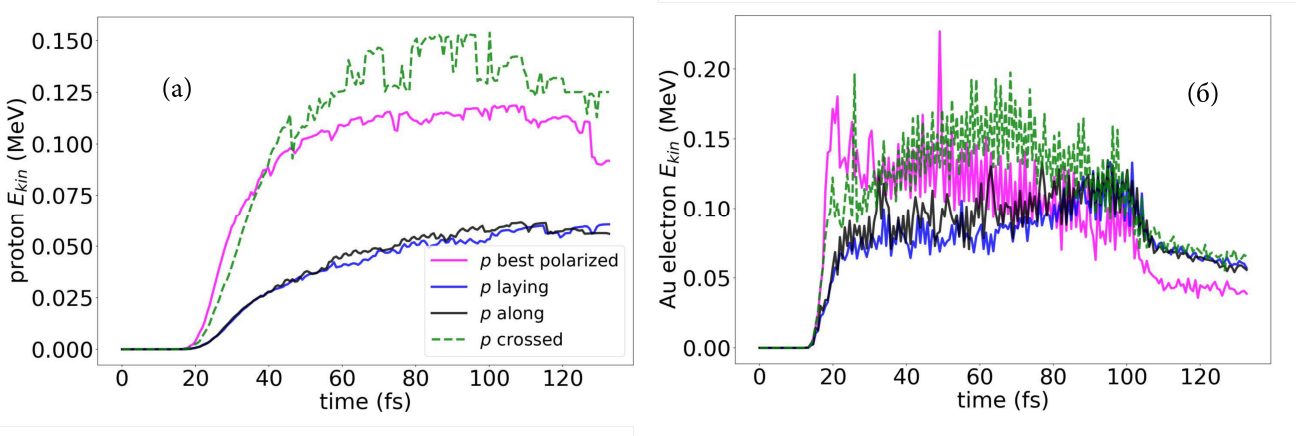

Рис. 4. Эволюция во времени средней энергии всех ионов (*а*) и отдельно ионов золота (*б*) при прохождении лазерного импульса интенсивностью $4 \cdot 10^{17}$ Вт/см^2 при наличии наноантенн различной формы: квадруполь — зеленая штриховая линия, диполь с идеальной ориентацией вдоль вектора поляризации излучения — пурпурная сплошная линия, диполь поперек поля — синяя, диполь по направлению распространения импульса излучения — черная. Размеры стержня диполя и квадруполя 25×85 нм

по направлению прохождения лазерного импульса (ср. зеленую штриховую линию с синей и черной линиями на рис. 2). Мы также рассмотрели наноантенны сферической формы и их резонансные свойства; будучи полностью симметричными, они не должны быть чувствительны к ориентации векторов поля излучения и распространения лазерного импульса. Отметим, что для наноантенн, отличных от диполя, нет явной формулы для оценки их оптимальных размеров и резонансных свойств. Таким образом, мы использовали оценку масштаба по формуле (1) в качестве отправной точки для определения размера антенны и искали оптимальный размер и форму наноантенны. Для сферических наноантенн мы протестировали диаметры 25, 42.5, 85 и 150 нм, и на рис. 3 представили полученные результаты в сравнении друг с другом.

На рис. 3 видно, что наноразмерные квадруполи дают лучшее поглощение энергии в среде и усиление поля по сравнению с большинством других наноантенн исследованных нами форм и размеров. Энергия, приобретенная протонами вблизи квадрупольной наноантенны, и энергия ионов самой наноантенны в процессе прохождения импульса излучения интенсивностью $4 \cdot 10^{15}$ Вт/см^2 меньше энергии, полученной в присутствии диполя, который направлен идеально по вектору поляризации электрического поля. Последний случай возможен на практике, но при случайной ориентации присадок в веществе получится смесь всех ориентаций диполей, что в целом менее выгодно с точки зрения поглощения энергии из волны, чем случайная ориентация квадруполей. Последняя, как оказалось, не чувствительна к ориентации относительно вектора поля волны. Заметим также, что для сферических присадок увеличение энергии происходит при увеличении их диаметра лишь до величины, примерно равной размеру дипольного наностержня. При этом мы получили неожиданный результат: оказалось, что дальнейшее увеличение диаметра сферы больше 85 нм практически не дает повышения энергии протонов при ионизации (ср. зеленую штриховую с черной линией на рис. 3). Этот результат требует более глубокого анализа в последующих исследованиях. В то же время на рис. 3 видно, что если в качестве наноантенн использовать относительно большие легирующие наносферы диаметром 150 нм, то энергия ионизированных атомов золота в наноантеннах увеличивается почти в полтора раза (ср. зеленую штриховую и черную сплошную линии на нижнем рис. 3 *б*). В целом мы видим, что по сравнению с другими исследованными наноантеннами квадрупольные наноантенны дают наибольшее усиление электрического поля вокруг себя и наибольшее поглощение энергии из волны при резонансе с лазерным импульсом умеренной интенсивности порядка 10^{15} Вт/см^2. При данной интенсивности импульса некоторое преимущество все же имеет идеально ориентированный нанодиполь, но на практике при изготовлении легированного полимера трудно достичь единообразной ориентации диполей по вектору волны излучения. Таким образом, предпочтительной является менее чувствительная к положению в среде наноантенна квадрупольного типа, которая дает результаты,

сравнимые с результатами нанодиполя в идеальном положении. Отметим также, что сравнение динамики ионизации с различными примесями в полях меньшей интенсивности порядка 10^{13}–10^{15} Вт/см^2 не выявило качественных отличий от полученных нами результатов при 10^{15} Вт/см^2; мы опускаем ряд соответствующих графиков для краткости. Мы провели серию компьютерных экспериментов, смоделировав ионизацию среды с наноантеннами рассмотренных выше типов при прохождении лазерного импульса значительно более высокой интенсивности порядка 10^{17} Вт/см^2, т. е. увеличив интенсивность импульса на два порядка величины. Результаты при этом оказались довольно неожиданными; они представлены на рис. 4.

На рис. 4 видно, что при прохождении в среде лазерного импульса высокой интенсивности, $4 \cdot 10^{17}$ Вт/см^2, полученные численно средние энергии ионов выросли примерно на порядок по сравнению с результатами при тех же условиях и интенсивности импульса на два порядка меньше: $4 \cdot 10^{15}$ Вт/см^2 (ср. рис. 4 с рис. 2 и 3). Кроме того, получены первые результаты для интенсивности излучения $2{\cdot}10^{18}$ Вт/см^2, т. е. еще в пять раз выше; они показывают лишь незначительное увеличение энергии ионов, особенно в случае дипольных наноантенн. Это в некотором смысле означает, что в волне электромагнитного импульса интенсивностью выше приблизительно 10^{17} Вт/см^2 начинается своего рода насыщение по энергии в процессе ионизации среды. При этом квадрупольная наноантенна неожиданно дает лучшие результаты, чем дипольная даже в ее идеальной ориентации: ионы приобретают большую энергию по сравнению с той, что получается в присутствии диполя в любом положении (ср. взаимное положение пурпурной сплошной и штриховой зеленой линий на рис. 4 и на рис. 2). Эти результаты требуют отдельного детального рассмотрения; предварительный анализ проведен нами в следующем разделе.

Имеющиеся на настоящий момент данные свидетельствуют о том, что с ростом интенсивности лазерного импульса выше 10^{17} Вт/см^2 насыщение по приобретенной в процессе ионизации энергии наступает значительно раньше с наноантеннами дипольной формы, чем с наноантеннами квадрупольной формы; последние не только дают более высокую энергию частицам при ионизации, но и имеют более высокий потолок энергий. Дальнейшее увеличение интенсивности импульсов излучения требует осторожности. Это продиктовано в первую очередь возможным разрушением наноантенн в интенсивных полях при выходе значительной доли электронов проводимости из золота. Последнее явление может наблюдаться в полях меньшей интенсивности, чем 10^{19} Вт/см^2, что мы покажем в следующем разделе. Для использованных нами при моделировании значений поля порядка 10^{17} Вт/см^2 численные результаты надежны и обеспечены как нашими наработками в процессе компьютерного моделирования, так и испытаниями разработчиков программного обеспечения EPOCH. Так что мы с достаточной уверенностью можем утверждать, что приведенная нами в следующем разделе динамика процессов ионизации справедлива.

4. АНАЛИЗ ДИНАМИКИ ИОНИЗАЦИИ В СРЕДЕ С КВАДРУПОЛЬНОЙ НАНОАНТЕННОЙ

Для анализа данных моделирования EPOCH нами использовалась специально доработанная программа LLNL VisIt. В настоящем разделе покажем результаты анализа эволюции ионов в динамике прохождения лазерного импульса и его взаимодействия с атомами в среде с квадрупольными наноантеннами. Результаты для энергии получающихся ионов представлены на рис. 5. Эволюция энергии, приобретенной ионами, представлена на рис. 5 на четырех графиках; масштаб графиков динамический и отражает основные особенности каждой стадии. Показаны четыре основных стадии процесса: на рис. 5 *а* видно, как в начале прохождения импульса электромагнитной волны появляются заряды с энергией в основном порядка 10^{-15} Дж, это главным образом электроны за счет ионизации среды. После половины длительности лазерного импульса на рис. 5 *б* виден значительный прирост энергии частиц в области вокруг наноантенны, это в основном протоны. При этом увеличилось количество частиц с высокой энергией и собственно энергия частиц, по сравнению с началом процесса на рис. 5 *а*; у многих частиц энергия теперь превышает 10^{-14} Дж; отметим, что максимальные энергии оказываются у ионов в непосредственной близости от наноантенны. На рис. 5 *в* показана система в момент времени через приблизительно 3/4 длительности импульса лазерного излучения. Обратим внимание, что энергии протонов не увеличились по сравнению с предыдущим рис. 5 *б*, но через облако протонов с энергией $2 \cdot 10^{-15}$ Дж явно виден крест ионов золота квадрупольной наноантенны; их энергия превышает энергию протонов. Наконец, после прохождения ионизи-

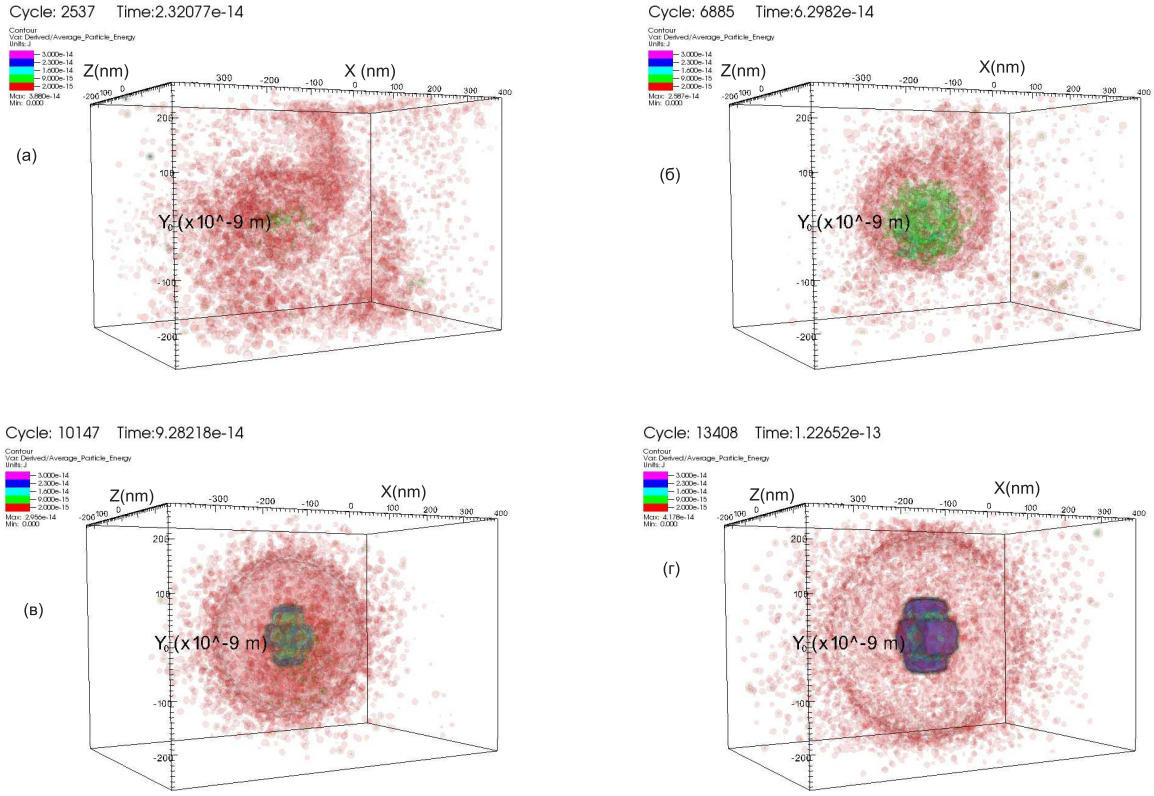

Рис. 5. Эволюция энергии ионов, получающихся при прохождении лазерного импульса интенсивностью $4 \cdot 10^{17}$ Вт/см^2 и его взаимодействии с квадрупольной наноантенной в начале лазерного импульса (*а*), после половины его длительности (*б*), после $3/4$ импульса (*в*), в конце импульса (*г*)

рующего импульса на рис. 5 *г* видно, что количество и энергия протонов не увеличились, они распределились в более широкой области, возросла энергия ионов золота и они сформировали четкий крест, повторяющий форму наноантенны. Отметим, что размер кластера в виде креста, представляющего скопление ионов с энергией близкой к максимальной, увеличился по мере прохождения импульса.

Интересно распределение по энергиям ионов, которые после прохождения импульса электромагнитного излучения сосредоточились в крестообразном кластере вокруг квадрупольной антенны, как показано на рис. 6 *а*.

Распределение по энергиям на рис. 6 *а* по сути представляет увеличенный фрагмент рис. 5 *г* с настройкой по разрешению и диапазону энергий. Отметим, что максимальные энергии оказались у ионов на границах кластера, в то время как внутри него энергии ионов меньше. Кроме того, отметим, что сам кластер ионов с максимальной энергией примерно в два раза больше линейных размеров антенны по каждому направлению (ср. с электронной плотностью антенны до прохождения импульса излучения на рис. 6 *б*). Рассмотрим теперь распределение продуктов ионизации в пространстве во время прохождения лазерного импульса. Это можно проследить в динамике при анализе баз больших данных для каждого случая; в настоящей работе представим лишь несколько результатов для отдельных моментов времени. Обратим особое внимание на эволюцию электронной плотности и появление ионов золота на месте наноантенны на рис. 7.

В начальный момент до прохождения лазерного импульса в наноантенне электроны золота представляют форму креста по размеру самой антенны (см. рис. 6 *б*). Но после прохождения одной трети времени импульса излучения интенсивностью $4 \cdot 10^{17}$ Вт/см^2 мы видим образование ионов золота и недостаток электронов в большой части наноантенны (см. рис. 7 *а*); на рисунке виден «стекший» крест плазмона электронов (оранжевый цвет) и образовавшиеся на его месте ионы золота. Такая ситуация поддерживается с разной концентрацией электронов внутри антенны и меняющимся плазмоном до почти половины времени ионизирующего импульса.

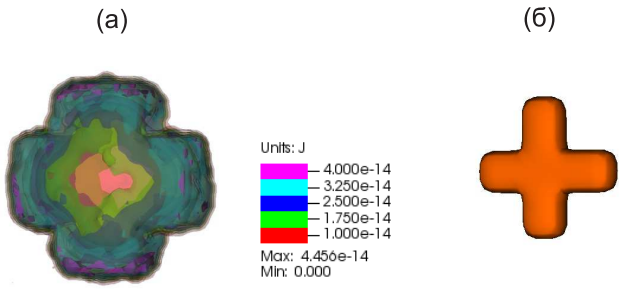

Рис. 6. *а* — Распределение ионов золота по энергиям после прохождения импульса интенсивностью $4 \cdot 10^{17}$ Вт/см^2. *б* — Электронная плотность наноантенны до прохождения импульса излучения

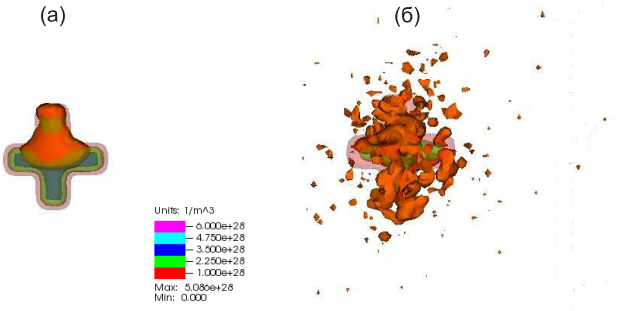

Рис. 7. Распределение в пространстве плотности электронов и ионов золота при ионизации наноантенны после примерно $1/3$ длительности импульса излучения интенсивностью $4 \cdot 10^{17}$ Вт/см^2 (*а*) и ближе к половине длительности импульса (*б*). Электроны наноантенны — оранжевые, ионы золота показаны разными цветами в зависимости от их плотности распределения в наноантенне

При интенсивности последнего $4 \cdot 10^{17}$ Вт/см^2, по прохождении всего половины длительности лазерного импульса практически все электроны оказываются «выбиты» из золотой наноантенны, как видно на рис. 7 *б*. По прошествии всего импульса излучения процесс ионизации закончился и ионы оказались распределены в пространстве вокруг антенны, как представлено на рис. 8; на нем желтым цветом показано распределение протонов в пространстве после прохождения лазерного импульса. Полученные нами результаты динамики ионизации в среде с наноантенной дают представление о возможной причине насыщения по энергии, переданной ионам, при дальнейшем увеличении интенсивности ионизирующего электромагнитного импульса. Нами зафиксирован практически полный выход электронов проводимости из золота уже на половине длительности импульса с интенсивностью $4 \cdot 10^{17}$ Вт/см^2. Увеличение последней не приводит к существенному увеличению энергии полученных продуктов ионизации, так как наступает ионизация самой антенны, электроны оказываются выброшенными из зоны проводимости и наноантенна теряет свои резонирующие свойства.

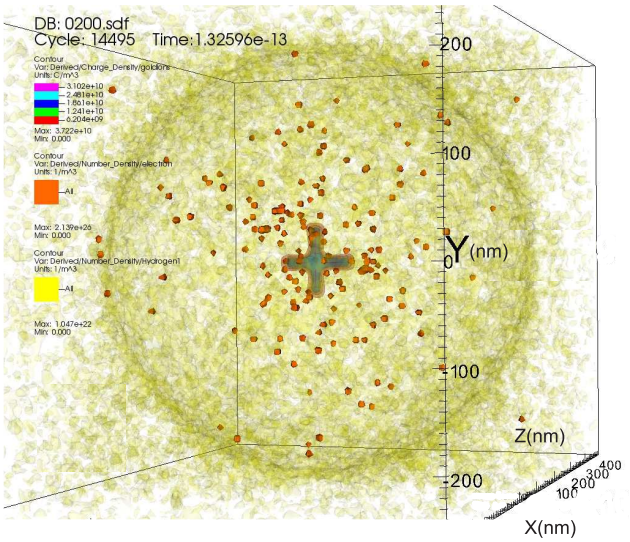

Рис. 8. Распределение ионизированных частиц в пространстве после прохождения лазерного импульса интенсивностью $4 \cdot 10^{17}$ Вт/см^2 и его взаимодействия с квадрупольной наноантенной. Выброшенные электроны — оранжевые точки, протоны — желто-зеленые везде, ионы золота — крест в центре; распределение плотности ионов золота показано разными цветами от $6 \cdot 10^9$ до $3 \cdot 10^{10}$ единиц на м^3

5. ВЫВОДЫ

В настоящем исследовании проведено численное моделирование влияния примеси наноантенн в диэлектрической среде на процесс ионизации при прохождении лазерного импульса интенсивностью порядка 10^{15}–10^{17} Вт/см^2 с помощью программного пакета EPOCH. Проведены компьютерные эксперименты с прохождением импульса инфракрасного лазерного излучения с длиной волны примерно 800 нм, линейной поляризацией и длительностью около 100 фс через плотную диэлектрическую среду с наноантеннами сферического, квадрупольного и дипольного типов различных размеров и ориентаций. Для анализа и исследования полученных результатов разработано и адаптировано специальное программное обеспечение с привлечением пакетов LLNL VisIt, Mathworks MatLab и matplotlib на Python. С его помощью проведен сравнительный анализ влияния геометрической формы и размеров наноантенн на их резонансные свойства, получены и проанализированы большие мас-

сивы данных около 15 ТБ, включающие результаты моделирования пространственного распределения поля, энергии электронов и ионов, получающихся при прохождении импульса излучения, и другие характеристики.

Анализ полученных результатов численного моделирования показывает значительное влияние ориентации дипольных антенн на поглощение энергии электромагнитного импульса; разница в энергии ионов при этом в зависимости от ориентации диполей относительно вектора поляризации может составлять порядок величины и более. Примесь квадрупольных наноантенн в среде увеличивает приобретенную ионами энергию при прохождении лазерного импульса. Очевидно, что наноантенны сферической формы в силу симметрии нечувствительны к ориентации и поляризации волны лазерного импульса. Однако их эффективность существенно ниже, чем у дипольных или квадрупольных антенн. Наше исследование показывает, что увеличение размера сферических наноантенн улучшает поглощение ими энергии из волны до достижения диаметра антенн 85 нм, примерно соответствующего оптимальной длине резонирующих нанодиполей выбранного нами сечения. Численное моделирование показало, что дальнейшее увеличение диаметра наноантенн не приводит к увеличению энергии полученных ионов в окрестности наноантенн, но приводит к некоторому увеличению энергии ионов золота, из которого состоят наноантенны и из которого в процессе ионизации выбрасываются электроны. Эффективность дипольных и квадрупольных наноантенн при одинаковых условиях оказалась выше, чем у сферических наноантенн.

В процессе анализа полученных данных моделирования выявлено, что увеличение интенсивности лазерного импульса на два порядка до значений $4 \cdot 10^{17}$ Вт/см^2, дает увеличение энергии ионов немногим более чем на порядок по сравнению с энергией ионов при прохождении импульса интенсивностью $4 \cdot 10^{15}$ Вт/см^2. Более того, анализ всех результатов моделирования, включая предварительные результаты в поле интенсивностью $2{\cdot}10^{18}$ Вт/см^2, показал, что увеличение интенсивности излучения выше приблизительно 10^{17} Вт/см^2 приводит лишь к незначительному увеличению энергии частиц при ионизации.

Мы приходим к выводу, что квадруполи проявляют лучшие резонансные свойства, чем диполи или сферические наноантенны, особенно в сильных полях. В целом в большинстве случаев квадрупольные наноантенны более эффективны, чем другие, исследованные нами; они обеспечивают лучшее поглощение энергии из облучающего импульса, сравнимое с поглощением дипольными наноантеннами в их идеальной ориентации по вектору поляризации поля лазерного излучения. В сильном поле интенсивностью порядка 10^{17} Вт/см^2 квадрупольные наноантенны выделялись лучшей эффективностью в отношении поглощения энергии излучения в сравнении с наноантеннами другой формы, а также более высокой энергией ионизации частиц. Даже дипольная антенна оптимальной длины, идеально ориентированная вдоль вектора поляризации поля излучения, менее эффективна, чем квадруполь в резонансе с излучением.

Анализ динамики ионизации среды с наноантенной при интенсивности импульса $4 \cdot 10^{17}$ Вт/см^2 показал, что после прохождения импульса практически частицы с энергией, близкой к максимальной, находятся в окрестности наноантенны в кластере, примерно в два раза большем ее линейных размеров по каждому измерению. Энергии ионов максимальны на границах кластера, в то время как внутри него энергии ионов меньше.

При ионизации импульсом излучения интенсивностью $4{\cdot}10^{17}$ Вт/см^2, по мере его прохождения происходит довольно сильная ионизация самой антенны. Образование ионов золота и интенсивный выход проводящих электронов из золота происходит уже после прохождения трети электромагнитного импульса. После прохождения половины лазерного импульса большинство электронов проводимости оказываются «выбиты» из золотой наноантенны, и на их месте остается ионизированное золото. После этого почти не происходит резонанса антенны с излучением, по крайней мере, при участии газа проводящих электронов. По окончании ионизации получаем полностью ионизированный крест золотой наноантенны, скопление ионов с высокими энергиями в области пространства вблизи нее в объеме, примерно в десять раз большем объема антенны до ионизации, и облако протонов, разбегающихся от наноантенны с меньшими энергиями.

Анализ имеющихся на настоящий момент результатов показывает, что при увеличении интенсивности импульса выше 10^{17} Вт/см^2 наступает своего рода насыщение по энергии, приобретенной в процессе ионизации. Причиной, по-видимому, является выход электронов проводимости из наноантенны и потеря ею резонансных свойств вскоре после встречи с электромагнитным импульсом. Предварительный анализ показывает, что насыщение наступает по времени раньше с наноантеннами дипольной

формы, чем с наноантеннами квадрупольной формы, которые не только способствуют приобретению большей энергии ионами при прохождении лазерного импульса, но и дают более высокий потолок этих энергий при ионизации.

Финансирование. Работа К. В. Ж. выполнена при поддержке гранта NKFI-Advanced 150038. Работа И. П. выполнена при поддержке гранта NL-2022-00002.

ЛИТЕРАТУРА

1. Л. П. Чернай, ЖЭТФ **92**, 379 (1987) [L. P. Csernai, Sov. Phys. JETP **65**, 219 (1987)].

2. L. P. Csernai and D. D. Strottman, Laser Part. Beams **33**, 279 (2015).

3. C. Kern, M. Zürch, J. Petschulat et al., Appl. Phys. A **104**, 15 (2011).

4. L. P. Csernai, N. Kroó, and I. Papp, Laser Part. Beams **36**, 171 (2018).

5. L. P. Csernai, M. Csete, I. N. Mishustin et al., Phys. Wave Phenom. **28**, 187 (2020).

6. I. Papp, L. Bravina, and M. Csete, Phys. Lett. A **396**, 12724 (2021).

7. P. L. Csonka and N. Kroo, Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. A **376**, 283 (1996).

8. K. Zhukovsky, Rad. Phys. Chem. **189**, 109698 (2021).

9. K. Zhukovsky, Ann. der Phys. **533**, 2100091 (2021).

10. К. В. Жуковский, УФН **191**, 318 (2021) [K. Zhukovsky, Phys.-Usp. **64**, 304 (2021)].

11. K. Zhukovsky, Opt. Laser Technol. **143**, 107296 (2021).

12. К. В. Жуковский, Изв. вузов. Радиофизика **65**, 96 (2022) [K. V. Zhukovsky, Radiophys. Quant. Electron. **65**, 88 (2022)].

13. G. Zhang, M. Huang, A. Bonasera et al., Phys. Lett. A **383**, 2285 (2019).

14. D. Mariscal, T. Ma, S. C. Wilks et al., Phys. Plasmas **26**, 043110 (2019).

15. A. G. MacPhee, D. Alessi, H. Chen et al., Optica **7**, 129 (2020).

16. R. A. Simpson, G. G. Scott, D. Mariscal et al., Phys. Plasmas **28**, 013108 (2021).

17. I. Papp, L. Bravina, M. Csete et al., Phys. Rev. X Energy **1**, 023001 (2022).

18. I. Papp, L. Bravina, M. Csete et al., Front. Phys. **11**, 1116023 (2023).

19. L. Novotny, Phys. Rev. Lett. **98**, 266802 (2007).

20. M. S. Dresselhaus, *Solid State Physics*, Part II, *Optical Properties of Solids*, MIT Lecture Notes (2001), http://web.mit.edu/6.732/www/6.732-pt2.pdf.

21. M. Csete, A. Szenes, E. Tóth et al., Plasmonics **17**, 775 (2022).

22. S. A. Maier, *Plasmonics: Fundamentals and Applications*, Springer Science and Business Media, New York (2007).

23. K. Lance Kelly and E. Coronado, J. Phys. Chem. B **107**, 668 (2003).

24. W. Ding, J. Lim, H. Do et al., Nanophotonics **9**, 3303 (2020).

25. F. H. Harlow, J. Assoc. Comput. Mach. **4**, 137 (1957).

26. T. D. Arber, K. Bennett, C. S. Brady et al., Plasma Phys. Control. Fusion **57**, 113001 (2015).

27. https://epochpic.github.io/#about.

28. W. J. Ding, J. Z. J. Lim, H. T. B. Do et al., Nanophotonics **9**, 3303 (2020).

29. K. Nanbu and S. Yonemura, J. Comput. Phys. **145**, 639 (1998).

30. F. Pérez, L. Gremillet, A. Decoster et al., Phys. Plasmas **19**, 083104 (2012).