

ФАЗОВЫЙ ПЕРЕХОД ВИДИМОСТЬ-НЕВИДИМОСТЬ В ФРАКТАЛЬНОМ КЛАСТЕРЕ

В.В.Максименко, А.А.Лушиников

*Научно-исследовательский физико-химический институт им. Л.Я.Карпова
103064 Москва, Россия*

Поступила в редакцию 21 января 1993 г.

Фрактальная размерность $D = 3/2$ является критической. При этом значении D оптические свойства фрактального кластера испытывают резкий скачок. При $D > 3/2$ мономеры кластера рассеивают свет некогерентно. При $D < 3/2$ происходит гигантское возрастание рассеяния, связанное с проявлением дальнедействующих корреляций в расположении частиц фрактального кластера.

Фрактальный кластер (ФК) – это агломерат мельчайших твердых частиц-мономеров¹. Его главная отличительная черта – масштабная инвариантность: система остается самоподобной при изменении пространственного масштаба в довольно широких пределах. Масштабная инвариантность обуславливает медленное (по степенному закону) спадание парных корреляций в расположении частиц-мономеров, благодаря чему возможно когерентное рассеяние света ФК. Оказывается переход от некогерентного к когерентному рассеянию является очень резким и определяется фрактальной размерностью кластера D . Исследованию этого перехода и посвящено это сообщение.

Мы рассматриваем рассеяние света ФК, состоящим из нанометровых металлических частиц. Характерный размер кластера L предполагается одного порядка с длиной волны падающего излучения λ . Рассматриваемые частоты близки к частотам дипольных поверхностных плазмонов в изолированных частицах кластера, то есть соответствуют видимому – ультрафиолетовому участку спектра. Отдельный мономер есть сферическая частица с радиусом $R \ll \lambda \sim L$.

ФК с $L \gg R$ – довольно эфемерная конструкция, характерная черта которой наличие большого числа полостей со степенным распределением по размерам¹. Вблизи частот поверхностных плазмонов в кластере происходит обычная перенормировка длины волны падающего фотона: длина волны фотона в кластере λ_{int} становится гораздо меньше длины волны падающего фотона λ . Для типичной траектории фотона внутри ФК характерно многократное переотражение от стенок полостей или "зацикливание" на паре мономеров, показанное на рис.1. Нетрудно построить (см. здесь же) простое уравнение для усредненной t -матрицы рассеяния фотона на частице-монимере, отражающее именно эту особенность движения фотона в кластере. Здесь пунктирная линия соответствует потенциалу взаимодействия фотона с частицей P ; с точкой связан множитель n_0 (n_0 – средняя концентрация частиц в кластере); тонкая горизонтальная линия – пропагатор свободного фотона в калибровке с нулевым скалярным потенциалом D^0 ; жирная горизонтальная линия – усредненный фотонный пропагатор в кластере D , удовлетворяющий уравнению Дайсона, представленному здесь же, и Σ – массовый оператор фотона, определенный последними строчками рис.1.

Дифференциальное сечение упругого рассеяния фотона кластером получается после усреднения квадрата модуля амплитуды рассеяния τ , для которой существует ряд теории возмущений^{2,3}

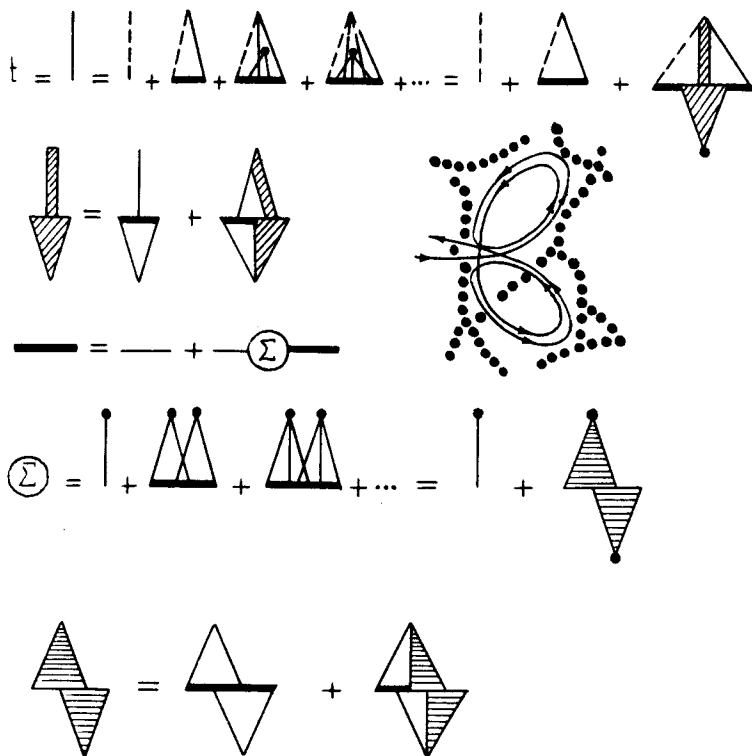


Рис.1 Типичная траектория фотона в фрактальном кластере. Ряд теории возмущений для усредненной t -матрицы рассеяния фотона на мономере, уравнение Дайсона для одночастичного пропагатора фотона в кластере и ряд теории возмущений для массового оператора фотона, построенные в соответствии с картиной распространения фотона в фрактальном кластере

$$\tau = e_{i\alpha} \int e^{-i\mathbf{k}_i \cdot \mathbf{r}} \sum_a \mathcal{P}_{\alpha\beta}^a(\mathbf{r}, \mathbf{r}') e_{j\beta} e^{i\mathbf{k}_f \cdot \mathbf{r}'} d\mathbf{r} d\mathbf{r}' + e_{i\alpha} \int e^{-i\mathbf{k}_i \cdot \mathbf{r}} \sum_a \mathcal{P}_{\alpha\beta}^a(\mathbf{r}, \mathbf{r}_1) \times \\ \times D_{\beta\gamma}^0(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2) \sum_b \mathcal{P}_{\gamma\nu}^b(\mathbf{r}_2, \mathbf{r}') e_{j\nu} e^{i\mathbf{k}_f \cdot \mathbf{r}'} d\mathbf{r} d\mathbf{r}' d\mathbf{r}_1 d\mathbf{r}_2 + \dots$$

Здесь

$$\mathcal{P}_{\alpha\beta}^a(\mathbf{r}, \mathbf{r}') = \frac{\epsilon(\omega) - 1}{4\pi} \delta_{\alpha\beta} \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}') \theta(R - |\mathbf{a} - \mathbf{r}|) \frac{\omega^2}{c^2}$$

– потенциал взаимодействия фотона с частицей, центрированной в точке a ,

$$D_{\alpha\beta}^0(\mathbf{r}, \mathbf{r}') = \left(\delta_{\alpha\beta} - \frac{c^2}{\omega^2} \frac{\partial^2}{\partial r_\alpha \partial r'_\beta} \right) \frac{e^{-i\omega|\mathbf{r}-\mathbf{r}'|/c}}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|} \quad (1)$$

– пропагатор свободного фотона, ω – частота, c – скорость света в вакууме, \mathbf{k}_i и \mathbf{k}_f – волновые векторы падающего и рассеянного фотонов, e_i и e_f – соответствующие единичные векторы поляризации, $\theta(x)$ – единичная ступенчатая функция Хевисайда и

$$\epsilon(\omega) = 1 - \omega_0^2/\omega^2,$$

где ω_0 – классическая плазменная частота электронного газа в металле, – диэлектрическая проницаемость металла.

Система уравнений рис.1 решается в дипольном приближении, используя то обстоятельство, что $R \ll \lambda$, а интересующий нас размер полостей порядка перенормированной длины волны фотона λ_{int} , которая вблизи частот поверхностных плазмонов также намного меньше λ (при этих условиях можно пренебречь первым слагаемым в выражении (1) для вакуумного пропагатора D^0 и искать решение уравнения Дайсона для D в виде $D_{\alpha\beta}(\mathbf{r}, \mathbf{r}') \propto \nabla_\alpha \nabla'_\beta G(\mathbf{r}, \mathbf{r}')$. Подробности можно найти в [2]). t -матрица выглядит следующим образом:

$$t_{\alpha\beta}^a(\mathbf{r}, \mathbf{r}') = \frac{\tau}{4\pi} \frac{\omega^2}{c^2} \delta_{\alpha\beta} \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}') \theta(R - |\mathbf{a} - \mathbf{r}|),$$

где резонансный множитель τ характеризует дипольный поверхностный плазмон в частице, находящейся в окружении других частиц кластера. Зависимость $|\tau|^2$ от безразмерной частоты $y = \frac{\omega}{\omega_1}$ ($\omega_1 = \omega_0/\sqrt{3}$ – частота дипольного поверхностного плазмона в изолированной частице) приведена на рис.2. С ростом D , как нетрудно видеть, поверхностный плазмон становится плохо определенным. Его характеристики слабо зависят от корреляций в расположении частиц ФК. Поэтому эти корреляции не учитывались при написании системы уравнений рис.1.

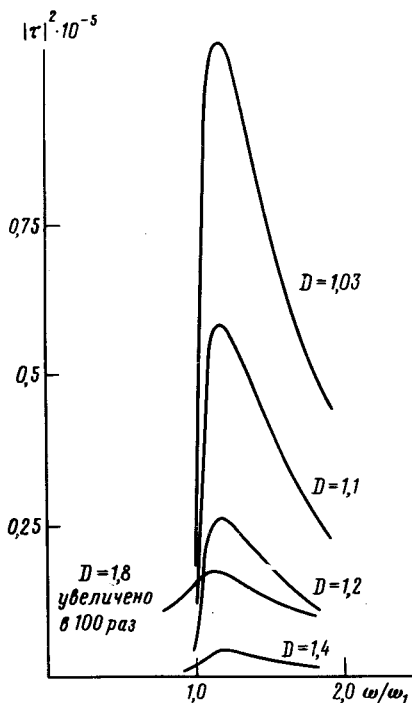


Рис.2. Зависимость от частоты величины $|\tau|^2$, характеризующей механизм усиления рассеяния, связанный с коллективным плазмонном в фрактальном кластере

Что касается сечения рассеяния, то здесь корреляции играют решающую роль. Усреднение квадрата модуля амплитуды τ дает для дифференциального сечения упругого рассеяния $d\sigma/dn_f$ (n_f – единичный вектор в направлении рассеянного кванта) ряд теории возмущений, структура которого ясна из рис.3. Зигзагообразная линия здесь соответствует парному коррелятору

$$g(r) = -\frac{r^{D-3}}{4\pi n_0 L^D \Gamma(D)} \exp\left(-\frac{r}{L}\right),$$

где $\Gamma(x)$ – гамма-функция Эйлера, волнистые линии – волновым функциям падающего фотона $e_i \exp(-ik_i r)$ и вылетающего $e_f \exp(ik_f r)$. Заштрихованные двухголовые блоки те же, что и в уравнении рис.1 для массового оператора Σ .

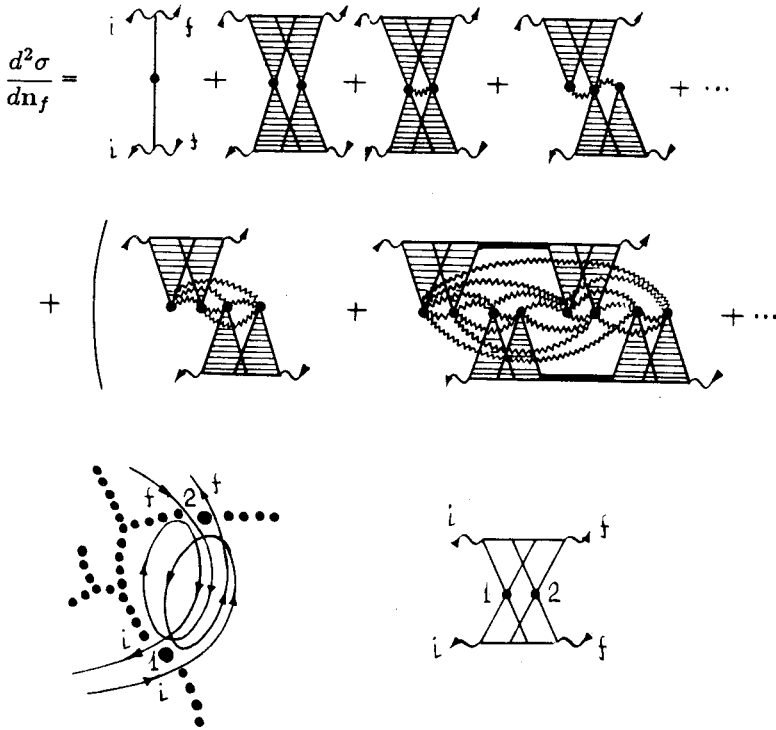


Рис.3. Ряд теории возмущений для усредненного дифференциального сечения упругого рассеяния фотона фрактальным кластером (на последней из диаграмм подпоследовательности, заключенной в скобки, изображены не все из 28 корреляторов). Типичный пример процессов, амплитуды вероятности которых интерферируют, и диаграмма, описывающая вклад этой интерференции в сечение рассеяния

Первое слагаемое в выражении для $d\sigma/dn_f$ рис.3 описывает обычное рэлеевское некогерентное рассеяние света мономерами. Остальные связаны с корреляционными и своеобразными интерференционными эффектами, имеющими место в рассматриваемой ситуации. Рассмотрим, например, вторую диаграмму справа. Так как длина волны падающего фотона $\lambda \sim L \gg R$, мы принципиально не в состоянии различить в каком порядке происходит многократный обход фотоном димера в фрактальной полости (будет ли это сначала частица 1, а затем частица 2, или наоборот). Иллюстрация к этому приведена на том же рисунке). Нет также возможности различить какой фотон (i -й или f -й) совершают этот обход. Интерференции амплитуд вероятности, соответствующих этим альтернативным возможностям, и обязана своим появлением вторая диаграмма рис.3. Любопытно, что с этой точки зрения причина первой диаграммы, описывающей рэлеевское рассеяние, связана исключительно

с нашим незнанием, какой именно фотон (i -й или f -й) в данный момент взаимодействует с частицей.

Основной вклад в рассеяние дают диаграммы подпоследовательности, заключенной в скобки. Чем больше закоррелировано частиц в диаграмме, тем сильнее ее вклад в сечение. Для диаграммы этого ряда, содержащей N скоррелированных частиц ($N \gg 1$), коэффициент усиления или отношение ее вклада в сечение к рэлеевскому сечению есть

$$|\tau|^N N^{\frac{3-2D}{D}} N^2 \left\{ \frac{\sin[(D-1)\arctg(2k_i L \sin \frac{\theta}{2})]}{(D-1)2k_i L \sin \frac{\theta}{2}} \right\}^{N/2}, \quad (2)$$

где θ – угол рассеяния, При $D < 3/2$ это гигантская величина, при $D > 3/2$ это практически 0. То есть при переходе D через значение $3/2$ объект из невидимого (рэлеевское рассеяние нанометровыми частицами ничтожное) становится видимым.

Физическая причина проявления когерентных эффектов в рассеянии при низких D связана либо с существованием в кластере длинных линейных цепочек из мономеров, расстояние между которыми порядка λ_{int} , так что рассеянные мономерами волны интерферируют конструктивно, либо в кластере существует большое число резонансных с λ_{int} скоррелированных полостей, которые также рассеивают "в фазе".

Для углового распределения рассеянного излучения, как это видно из выражения (2), характерно увеличенное рассеяние вперед, напоминающее рассеяние света дифракционной решеткой.

Рассмотренная задача (рассеяние фотона системой малых металлических частиц вблизи частоты дипольного поверхностного плазмона в изолированной частице) преследовала еще одну самостоятельную цель – показать, что интерференционные явления в рассеянии существуют даже в том случае, если на кластер падает всего один фотон ($L \sim \lambda$), а не волновой фронт, как в ситуации с дифракционной решеткой. Физическая причина интерференции в этом случае – подсос к кластеру (вблизи его резонансной моды) фотонов, прямо не падающих на него, "со стороны". Если пожертвовать плазменным механизмом усиления рассеяния (множитель $|\tau|^N$ в выражении (2)); корреляционный механизм усиления остается в силе и для ФК, состоящего из диэлектрических мономеров в том случае, если размер кластера превосходит длину волны фотона и на кластер падает большое число фотонов ⁴. Правда в этом случае будут наблюдаться особенности только в дифференциальном сечении рассеяния, полное сечение рассеяния возрастет не будет.

Способность ФК с низкими D к сильному когерентному рассеянию света тесно связана с возможностью существования внутри такого кластера сильных локальных электромагнитных полей. Это могут быть и когерентные электромагнитные поля флуктуационной природы и когерентные поля, наведенные в кластере внешними источниками. Типичными примерами объектов, где ожидается существование сильных локальных полей, являются фрактальная система трещин на поверхности некоторых металлических катализаторов ⁵ или же фрактальный каркас шаровой молнии, составленный из цепочечных агрегатов твердых нанометровых частичек ¹.

-
1. Б.М.Смирнов, Физика фрактальных кластеров, М.: Наука, 1991.
 2. В.В.Максименко, В.А.Крикунов, А.А.Лушников, ЖЭТФ **102**, 1571 (1992).
 3. А.А.Лушников, В.В.Максименко, ЖЭТФ **103**, 11 (1993).
 4. M.V.Berry, I.C.Percival, Opt. Acta **33**, 577 (1986).
 5. M.Fleismann, S.Pons, and M.Hawkins, J.Electrochem. Chem. **261**, 301 (1989).