

МИНИСТЕРСТВО НАУКИ И ВЫСШЕГО ОБРАЗОВАНИЯ РОССИЙСКОЙ ФЕДЕРАЦИИ
ФЕДЕРАЛЬНОЕ ГОСУДАРСТВЕННОЕ АВТОНОМНОЕ ОБРАЗОВАТЕЛЬНОЕ
УЧРЕЖДЕНИЕ ВЫСШЕГО ОБРАЗОВАНИЯ

«НОВОСИБИРСКИЙ НАЦИОНАЛЬНЫЙ ИССЛЕДОВАТЕЛЬСКИЙ ГОСУДАРСТВЕННЫЙ
УНИВЕРСИТЕТ» (НОВОСИБИРСКИЙ ГОСУДАРСТВЕННЫЙ УНИВЕРСИТЕТ, НГУ)

Факультет **ФИЗИЧЕСКИЙ**

Кафедра физики неравновесных процессов

Направление подготовки **03.03.02 ФИЗИКА**

Образовательная программа: **БАКАЛАВРИАТ**

ВЫПУСКНАЯ КВАЛИФИКАЦИОННАЯ РАБОТА

Кичигин Александр Александрович

(Фамилия, Имя, Отчество автора)

Тема работы: «Моделирование спектроскопии характеристических потерь энергии электронами методом дискретных диполей».

«К защите допущена»

Заведующий кафедрой

д. ф.-м. н., академик РАН,

зав. лаб. ИТ СО РАН

Алексеенко С. В./.....
(фамилия И., О.) / (подпись, МП)

«.....».....20...г.

Научный руководитель

к. ф.-м. н.

с. н. с. ИХКГ СО РАН

Юркин М. А./.....
(фамилия И., О.) / (подпись, МП)

«.....».....20...г.

Дата защиты: «.....».....20...г.

Новосибирск, 2020

Оглавление

1. Введение.....	3
1.1. Плазмонные наночастицы	3
1.2. Спектроскопия характеристических потерь энергии электронами	4
1.3. Метод дискретных диполей	5
1.4. Текущее состояние теории	6
2. Цель и задачи текущей работы	8
3. Теория.....	9
3.1. Постановка задачи.....	9
3.2. Подход баланса энергии	9
3.3. Потеря энергии негармоническими источниками	14
3.4. Поле релятивистского электрона.....	15
3.5. Собственные потери энергии электроном	19
3.6. Вынужденные потери энергии электроном.....	21
3.7. Вероятность потерь энергии электроном	23
4. Моделирование.....	24
4.1. Реализация в коде ADDA	24
4.2. Особенности реализации в коде	25
4.3. Сравнение с точными решениями	25
5. Заключение.....	29
6. Список литературы	30
Приложение 1. Теорема Парсеваля	33

1. Введение

1.1. Плазмонные наночастицы

Плазмонные наночастицы демонстрируют уникальные оптические свойства. Их спектры рассеяния и поглощения света имеют ярко выраженные пики в видимом диапазоне на длинах волн порядка сотен нанометров, хотя сами частицы имеют размеры порядка десятков нанометров. Такое необычное поведение вызвано наличием локализованных плазмонных резонансов (ЛПР) – коллективных резонансных колебаний свободного электронного газа внутри частицы, который взаимодействует с внешним полем. Энергии возбуждения ЛПР сильно зависят от геометрии, размера, внутренней структуры частицы и от коэффициента преломления окружающей ее среды. Варьирование этих параметров приводит к заметным изменениям оптических свойств частиц [1].

Для исследования оптических свойств частиц используются различные методы, которые позволяют с высокой чувствительностью определить их спектральные свойства. При исследовании одиночной наночастицы оптическими методами можно получить информацию об энергиях возбуждения ее ЛПР. Но оптические методы не могут быть использованы для определения пространственного расположения ЛПР на поверхности частицы ввиду дифракционного предела: для видимого диапазона дифракционный предел, равный половине длины волны света, превышает размеры самой частицы. Другими словами, оптические методы позволяют зарегистрировать наличие ЛПР с конкретной энергией, но не дают возможности локализовать местонахождение ЛПР внутри частицы. Более того, оптические методы по своей природе способны зарегистрировать только «светлые» (возбуждаемые плоскими волнами) моды ЛПР, не предоставляя никакой информации о «темных» модах. Спектроскопия характеристических потерь энергии электронами (EELS) позволяет обойти эти ограничения [2].

1.2. Спектроскопия характеристических потерь энергии электронами

Спектроскопия характеристических потерь энергии электронами, в англоязычной литературе – Electron-energy-loss spectroscopy (EELS), является экспериментальной техникой, представляет собой расширение для стандартного электронного микроскопа. В EELS на область расположения частицы направлен луч из релятивистских электронов с одинаковыми энергиями из диапазона 100–300 кэВ. Луч можно позиционировать с точностью 1 нм и меньше. После взаимодействия с частицей измеряются кинетические энергии электронов, прошедших по прямой траектории без отклонения (погрешность измерения менее 0.1 эВ), и рассчитываются потери энергии каждым электроном [2].

Полученные данные о потерях энергии представляют собой спектр EELS, который обычно разделяют на две основные области (Рис. 1). Первая область состоит из низких потерь энергии ($\Delta E < 50$ эВ), она включает в себя пик нулевых потерь (электроны не потеряли энергию) и плазмонные пики (потери, вызванные наличием ЛПП). Вторая область состоит из высоких потерь энергии ($\Delta E > 50$ эВ), обусловленных атомарно-молекулярной структурой вещества, и обычно используется для изучения элементного состава материала [3].

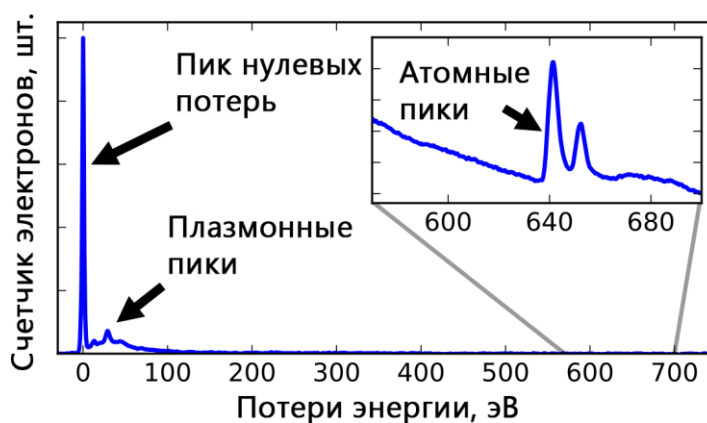


Рис. 1. Схематичный спектр EELS. Взято из [4].

В изучении ЛПП интерес представляет область низких потерь в спектре EELS. Спектр содержит информацию о плазмонных пиках именно для данного положения луча, направленного на частицу или вблизи нее. Путем варьирования положения луча можно получить спектры для всего поперечного сечения частицы, тогда станет возможным определить наиболее характерные для данной частицы пики потерь энергии и отметить их пространственное рас-

положение на сечении частицы. Таким образом, в эксперименте EELS получают не только данные об энергиях возбуждения ЛПП, но и об их расположении внутри частицы [4].

Для интерпретации результатов эксперимента EELS нужно иметь теоретическое описание взаимодействия частицы с полем релятивистского электрона, и реализацию этой теории в методе численного моделирования.

1.3. Метод дискретных диполей

Метод дискретных диполей, в англоязычной литературе – Discrete dipole approximation (DDA), является численно точным методом для моделирования взаимодействия электромагнитных волн с частицей произвольной формы и внутренней структуры [5]. Метод основан на формулировке уравнений Максвелла (УМ) в частотной области в виде объемного интегрального уравнения (ОИУ) [6].

В DDA весь объем частицы разбивается на конечный набор элементарных кубических объемов, затем каждый элементарный объем заменяется точечным диполем. Поляризуемость каждого диполя $\bar{\alpha}_i$ определяется показателем преломления среды того элементарного объема, который этот диполь заменяет. Поляризация каждого диполя $\bar{\mathbf{P}}_i$ определяется суперпозицией полей – падающего и от остальных диполей, получается система линейных уравнений (СЛУ) [7]:

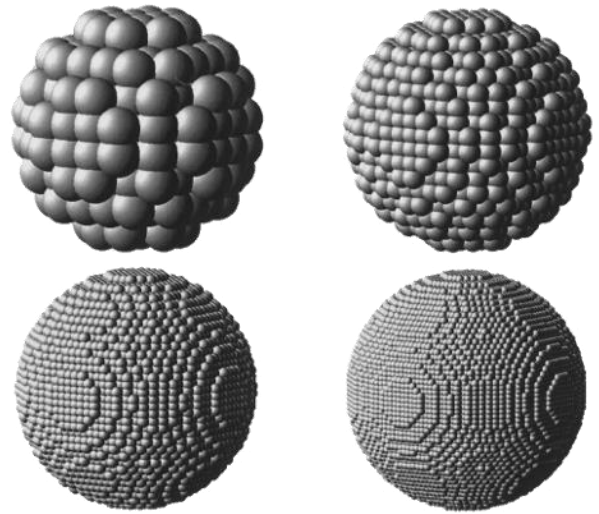


Рис. 2. Визуализации шарообразной частицы, разбитой на 280, 2176, 17256 и 57856 элементарных объемов. Взято из [7].

$$\bar{\mathbf{P}}_i = \bar{\alpha}_i \cdot \left[\mathbf{E}_{\text{inc}}(\mathbf{r}_i) + \omega^2 \mu_0 \sum_{j \neq i} \bar{\mathbf{G}}(\mathbf{r}_i, \mathbf{r}_j) \cdot \bar{\mathbf{P}}_j \right]. \quad (1)$$

Таким образом, решение УМ для произвольной частицы сводится к решению СЛУ. Эту задачу можно эффективно решать численно, а точность конечного решения определяется глубиной дискретизации по объему. Наиболее популярными реализациями DDA являются программы с открытым исходным кодом DDSCAT [8] и ADDA [9].

По своему замыслу DDA предоставляет возможность эффективно считать величины, выражаемые как интеграл от электрического поля (или наведенной поляризации) по объему частицы. В задаче светорассеяния наиболее часто такими величинами оказываются сечение экстинкции и сечение поглощения, а также интенсивность рассеянного излучения в зависимости от угла. DDA изначально создан для моделирования взаимодействия с плоскими волнами, но не ограничен ими – данный метод позволяет решать задачу о взаимодействии с произвольными электрическими полями. В задаче моделирования EELS это будет поле, создаваемое релятивистским электроном.

1.4. Текущее состояние теории

Потери энергии равномерно движущимся зарядом можно разделить на два типа. Потери энергии при движении в свободном пространстве (в отсутствие взаимодействия с частицей) назовем собственными потерями и обозначим мощность их потерь W_0 . Строго говоря, в данной работе мы используем W_0 для обозначения мощности потерь для гармонического поля на одной частоте ω , что с точностью до коэффициента есть спектральная мощность потерь, но обсуждение в этом разделе идет для всех частот сразу (аналогично для других W ниже). Потери энергии, вызванные исключительно взаимодействием с какой-либо частицей в пространстве, назовем вынужденными потерями и обозначим их мощность W_{enh} . Если заряд свободно движется в вакууме, то он не испытывает никаких потерь энергии: $W_0 = 0$. Если поместить в вакуум произвольную частицу, то известно, что мощность вынужденных потерь энергии зарядом будет совпадать с мощностью экстинкции данной частицы: $W_{\text{enh}} = W_{\text{ext}}$ [10,11]. Для случая произвольной среды с абсолютной диэлектрической

проницаемостью ε_h собственные потери тоже известны [12]: в среде без затухания ($\varepsilon_h \in \mathbb{R}$) собственные потери выражаются формулой Франка-Тамма; в произвольной среде ($\varepsilon_h \in \mathbb{C}$) аналитическое выражение в классической электродинамике получить невозможно из-за сингулярности напряженности электрического поля в точке, где расположен сам электрон, но существуют приближенные выражения, которые позволяют получить оценку этой величины. Вынужденные потери в средах, отличных от вакуума, в литературе не рассмотрены.

Таблица 1. Собственные и вынужденные потери энергии релятивистским зарядом, описанные в литературе.

Среда	Собственные потери W_0	Вынужденные потери W_{enh}
Вакуум, $\varepsilon_h \equiv \varepsilon_0$	0	Равны W_{ext}
Среда без затухания, $\varepsilon_h \in \mathbb{R}$	Формула Франка-Тамма (Черенковское излучение)	Не рассматривались
Произвольная среда, $\varepsilon_h \in \mathbb{C}$	Неопределенность, связанная с сингулярностью	Не рассматривались

2. Цель и задачи текущей работы

Цель данной работы – моделировать спектр EELS в наиболее общем случае и делать это наиболее эффективно. Наиболее общим случаем является частица произвольной формы и внутренней структуры (из комбинированных материалов), находящаяся в произвольной среде. Эффективным методом для настолько произвольных частиц и сред является DDA.

Для достижения поставленной цели необходимо решить следующие задачи:

- 1) Получить аналитические выражения для потерь энергии релятивистским зарядом, движущимся в произвольной среде вблизи произвольной частицы.
- 2) Найти связь полученных выражений с величинами, которые эффективно вычисляются в DDA.
- 3) Реализовать моделирование EELS в программе ADDA.
- 4) Провести численное моделирование спектров и сравнить с уже известными точными решениями.

3. Теория

Все теоретические выкладки в данной работе основаны на ОИУ в частотной области. В частности, напряженность электрического поля движущегося электрона выражается как интеграл с тензором Грина вдоль траектории электрона. В работе применен подход баланса энергии [7]. Данный подход позволил выразить вынужденные потери энергии релятивистским электроном (из-за взаимодействия с частицей) через интеграл по объему частицы – такую величину можно эффективно вычислять в DDA.

3.1. Постановка задачи

Условия: релятивистский электрон движется по прямой траектории вблизи частицы, потери энергии на взаимодействие малы, поэтому скорость считается постоянной. Такое допущение обосновано тем, что в EELS потери энергии составляют не более нескольких десятков эВ, а кинетическая энергия электрона составляет порядка 100 кэВ.

Задача: найти вынужденные потери энергии электроном.

Такая постановка задачи – частный случай для подхода баланса энергии [7].

3.2. Подход баланса энергии

Данная глава повторяет некоторые определения из [6,7,13]. Пусть в пространстве существуют внешние источники тока плотностью $\mathbf{J}_s(\mathbf{r})$, не зависящие от электромагнитного поля. Определим поля, генерируемые этими источниками $\mathbf{J}_s(\mathbf{r})$, считая, что они являются гармоническими с временной зависимостью $\exp(-i\omega t)$, где i – мнимая единица. Падающее (сгенерированное источниками) электромагнитное поле должно удовлетворять УМ в \mathbb{R}^3 . Приведем их для изотропной среды, не обладающей магнитными свойствами и имеющей абсолютную диэлектрическую проницаемость $\varepsilon_h = m_h^2 \varepsilon_0$ (m_h – показатель преломления среды):

$$\begin{aligned} \nabla \times \mathbf{E}_{\text{inc}}(\mathbf{r}) &= i\omega\mu_0 \mathbf{H}_{\text{inc}}(\mathbf{r}), \\ \nabla \times \mathbf{H}_{\text{inc}}(\mathbf{r}) &= -i\omega\varepsilon_h \mathbf{E}_{\text{inc}}(\mathbf{r}) + \mathbf{J}_s(\mathbf{r}). \end{aligned} \quad (2)$$

В дальнейшем, мы будем рассматривать случай как непоглощающей ($\varepsilon_h \in \mathbb{R}$), так и поглощающей среды ($\varepsilon_h \in \mathbb{C}$). Но в любом случае, мы предполагаем, что $0 \leq \arg \varepsilon_h < \pi$ (пассивная среда) и, следовательно, $0 \leq \arg m_h < \pi/2$ (\arg – аргумент комплексного числа). Мы используем функцию комплексного аргумента с диапазоном значений $(-\pi, \pi]$.

Частица – объект без магнитных свойств, который имеет конечный объем V_{int} и комплексную изотропную диэлектрическую проницаемость $\varepsilon_p(\mathbf{r}) = m_p^2(\mathbf{r})\varepsilon_0$ ($m_p(\mathbf{r})$ – коэффициент преломления). Тогда функция диэлектрической проницаемости во всем пространстве:

$$\varepsilon(\mathbf{r}) \stackrel{\text{def}}{=} \begin{cases} \varepsilon_h, & \mathbf{r} \in V_{\text{ext}}, \\ m^2(\mathbf{r})\varepsilon_h, & \mathbf{r} \in V_{\text{int}}, \end{cases} \quad (3)$$

где $V_{\text{ext}} = \mathbb{R}^3 \setminus V_{\text{int}}$, $m(\mathbf{r})$ – распределение коэффициента преломления в частице *относительно среды*: $m(\mathbf{r}) \stackrel{\text{def}}{=} m_p(\mathbf{r})/m_h$.

Присутствие объекта изменяет полное электромагнитное поле во всем пространстве, включающем V_{int} и внешний объем V_{ext} . Такое поле удовлетворяет следующим УМ:

$$\begin{aligned} \nabla \times \mathbf{E}(\mathbf{r}) &= i\omega\mu_0 \mathbf{H}(\mathbf{r}), \\ \nabla \times \mathbf{H}(\mathbf{r}) &= -i\omega\varepsilon(\mathbf{r})\mathbf{E}(\mathbf{r}) + \mathbf{J}_s(\mathbf{r}). \end{aligned} \quad (4)$$

Эти уравнения эквивалентны следующему объемно-интегральному уравнению на электрическое поле $\mathbf{E}(\mathbf{r})$ [6]:

$$\begin{aligned} \mathbf{E}(\mathbf{r}) &= \mathbf{E}_{\text{inc}}(\mathbf{r}) + k^2 \lim_{V_0 \rightarrow 0} \int_{\mathbb{R}^3 \setminus V_0} d^3\mathbf{r}' [m^2(\mathbf{r}') - 1] \bar{\mathbf{G}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}') \cdot \mathbf{E}(\mathbf{r}') \\ &\quad - \frac{m^2(\mathbf{r}) - 1}{3} \mathbf{E}(\mathbf{r}), \end{aligned} \quad (5)$$

где V_0 – шар с центром в \mathbf{r} для исключения сингулярности, $k = \omega\sqrt{\varepsilon_h\mu_0} = \omega m_h/c$ – волновое число в однородной изотропной среде (c – скорость света в вакууме), $\bar{\mathbf{G}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}')$ – тензор Грина для внешней среды, определенный как

$$\bar{\mathbf{G}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}') \stackrel{\text{def}}{=} \left(\bar{\mathbf{I}} + \frac{\nabla \otimes \nabla}{k^2} \right) \frac{\exp(ik|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|)}{4\pi|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|}, \quad (6)$$

где $\bar{\mathbf{I}}$ – единичный тензор, \otimes – тензорное произведение.

Падающее электрическое поле $\mathbf{E}_{\text{inc}}(\mathbf{r})$ выражается через источники:

$$\mathbf{E}_{\text{inc}}(\mathbf{r}) = i\omega\mu_0 \lim_{V_0 \rightarrow 0} \int_{V_S \setminus V_0} d^3\mathbf{r}' \bar{\mathbf{G}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}') \cdot \mathbf{J}_s(\mathbf{r}') - i \frac{\mathbf{J}_s(\mathbf{r})}{3\omega\epsilon_h}, \quad (7)$$

где V_S – объем, занимаемый источниками, а исключение сингулярности в объеме V_0 делает выражение применимым во всем \mathbb{R}^3 . В данной работе мы предполагаем, что источники лежат целиком вне частицы – $V_S \cap V_{\text{int}} = \emptyset$.

Дополнительно определим вектор поляризации внутри частицы

$$\mathbf{P}(\mathbf{r}) = [\epsilon(\mathbf{r}) - \epsilon_h] \mathbf{E}(\mathbf{r}), \quad (8)$$

тогда рассеянное поле выражается как

$$\mathbf{E}_{\text{sca}}(\mathbf{r}) \stackrel{\text{def}}{=} \mathbf{E}(\mathbf{r}) - \mathbf{E}_{\text{inc}}(\mathbf{r}) = \omega^2\mu_0 \lim_{V_0 \rightarrow 0} \int_{V_{\text{int}} \setminus V_0} d^3\mathbf{r}' \bar{\mathbf{G}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}') \cdot \mathbf{P}(\mathbf{r}') - \frac{\mathbf{P}(\mathbf{r})}{3\epsilon_h}. \quad (9)$$

Усредненный по времени поток энергии электромагнитного поля через единичную площадку выражается вектором Пойнтинга [14]:

$$\mathbf{S}(\mathbf{r}) = \frac{1}{2} \text{Re}[\mathbf{E}(\mathbf{r}) \times \mathbf{H}^*(\mathbf{r})]. \quad (10)$$

Интегрированием $\mathbf{S}(\mathbf{r})$ через замкнутую поверхность A получаем поток энергии, поступившей или потерянной в этом объеме внутри поверхности (согласно теореме Пойнтинга):

$$W = \oint_A d\mathbf{A} \cdot \mathbf{S}(\mathbf{r}), \quad (11)$$

где $d\mathbf{A} \stackrel{\text{def}}{=} \mathbf{n} d^2\mathbf{r}$, \mathbf{n} – вектор нормали к поверхности, знак выбран так, чтобы W был положительным, когда поток энергии направлен наружу. По формуле Гаусса-Остроградского, интеграл по поверхности можно свести к интегралу по объему и получаем

$$W = -\frac{\omega}{2} \int_{V_A} d^3\mathbf{r} |\mathbf{E}(\mathbf{r})|^2 \text{Im}[\epsilon(\mathbf{r})] - \frac{1}{2} \int_{V_A} d^3\mathbf{r} \text{Re}[\mathbf{E}(\mathbf{r}) \cdot \mathbf{J}_s^*(\mathbf{r})], \quad (12)$$

но эта формула, строго говоря, верна только если $\mathbf{E}(\mathbf{r})$ и $\mathbf{J}_s(\mathbf{r})$ регулярны (интегрируемы с квадратом) внутри V_A . В случае, когда внешняя среда непоглощающая ($\epsilon_h \in \mathbb{R}$), Ур. (12) можно применить для V_S в отсутствие частицы, т.е. заменив $\mathbf{E}(\mathbf{r})$ на $\mathbf{E}_{\text{inc}}(\mathbf{r})$, чтобы получить мощность собственных потерь W_0 .

Тогда первый член в Ур. (12) равен нулю, а второй можно преобразовать к следующему виду [7]:

$$W_0 = \frac{\omega\mu_0}{2} \iint_{V_s} d^3\mathbf{r} d^3\mathbf{r}' \mathbf{J}_s^*(\mathbf{r}) \cdot \bar{\mathbf{G}}^I(\mathbf{r}, \mathbf{r}') \cdot \mathbf{J}_s(\mathbf{r}'), \quad (13)$$

где мы используем обозначение

$$\bar{\mathbf{G}}^I(\mathbf{r}, \mathbf{r}') \stackrel{\text{def}}{=} \frac{1}{2i} \{ \bar{\mathbf{G}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}') - [\bar{\mathbf{G}}(\mathbf{r}', \mathbf{r})]^H \}, \quad (14)$$

что является ядром самосопряженного оператора, а H – эрмитово сопряжение. При этом Ур. (13) требует только интегрируемости $\mathbf{J}_s(\mathbf{r})$, что в отличие от интегрируемости с квадратом, выполняется и для дельта-функций. Отметим, что в изотропной среде всегда:

$$\bar{\mathbf{G}}^I(\mathbf{r}, \mathbf{r}') = \text{Im}[\bar{\mathbf{G}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}')], \quad (15)$$

а в непоглощающей среде $\bar{\mathbf{G}}^I(\mathbf{r}, \mathbf{r}')$ всегда конечен [7]:

$$\lim_{\mathbf{r} \rightarrow \mathbf{r}'} \bar{\mathbf{G}}^I(\mathbf{r}, \mathbf{r}') = \frac{k\bar{\mathbf{I}}}{6\pi}. \quad (16)$$

Аналогично, применяя Ур. (12) для V_s и \mathbf{E}_{sca} , мы получаем дополнительную мощность потерь W_{enh} за счет присутствия частицы, а часть интеграла по V_{int} сводится к мощности экстинкции (стандартная величина в задачах рассеяния) [7]:

$$\begin{aligned} W_{\text{enh}} &\stackrel{\text{def}}{=} -\frac{1}{2} \int_{V_s} d^3\mathbf{r} \text{Re}[\mathbf{E}_{\text{sca}}(\mathbf{r}) \cdot \mathbf{J}_s^*(\mathbf{r})] \\ &= -\frac{\omega^2\mu_0}{2} \int_{V_s} d^3\mathbf{r} \int_{V_{\text{int}}} d^3\mathbf{r}' \text{Re}[\mathbf{J}_s^*(\mathbf{r}) \cdot \bar{\mathbf{G}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}') \cdot \mathbf{P}(\mathbf{r}')], \end{aligned} \quad (17)$$

$$\begin{aligned} W_{\text{ext}} &\stackrel{\text{def}}{=} -\frac{\omega}{2} \int_{V_{\text{int}}} d^3\mathbf{r} \text{Im}[\mathbf{E}_{\text{inc}}(\mathbf{r}) \cdot \mathbf{P}^*(\mathbf{r})] \\ &= -\frac{\omega^2\mu_0}{2} \int_{V_{\text{int}}} d^3\mathbf{r} \int_{V_s} d^3\mathbf{r}' \text{Re}[\mathbf{P}^*(\mathbf{r}) \cdot \bar{\mathbf{G}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}') \cdot \mathbf{J}_s(\mathbf{r}')]. \end{aligned} \quad (18)$$

Схематично эти потоки энергии (вместе с другими величинами) представлены на Рис. 3. В данной работе источником выступает движущийся электрон, для которого V_s представляет собой бесконечную прямую. Интересно, что Ур. (17), (18) можно вычислить и в случае поглощающей внешней среды, но

при этом их физический смысл не столь ясен. Поглощение средой вносит значительные изменения в весь баланс энергии, в частности положение контуров на Рис. 3 нельзя свободно двигать вокруг частицы и источников. Эта проблема не имеет полностью удовлетворительного решения даже для интерпретации W_{ext} в стандартной задаче рассеяния плоских электромагнитных волн [15,16].

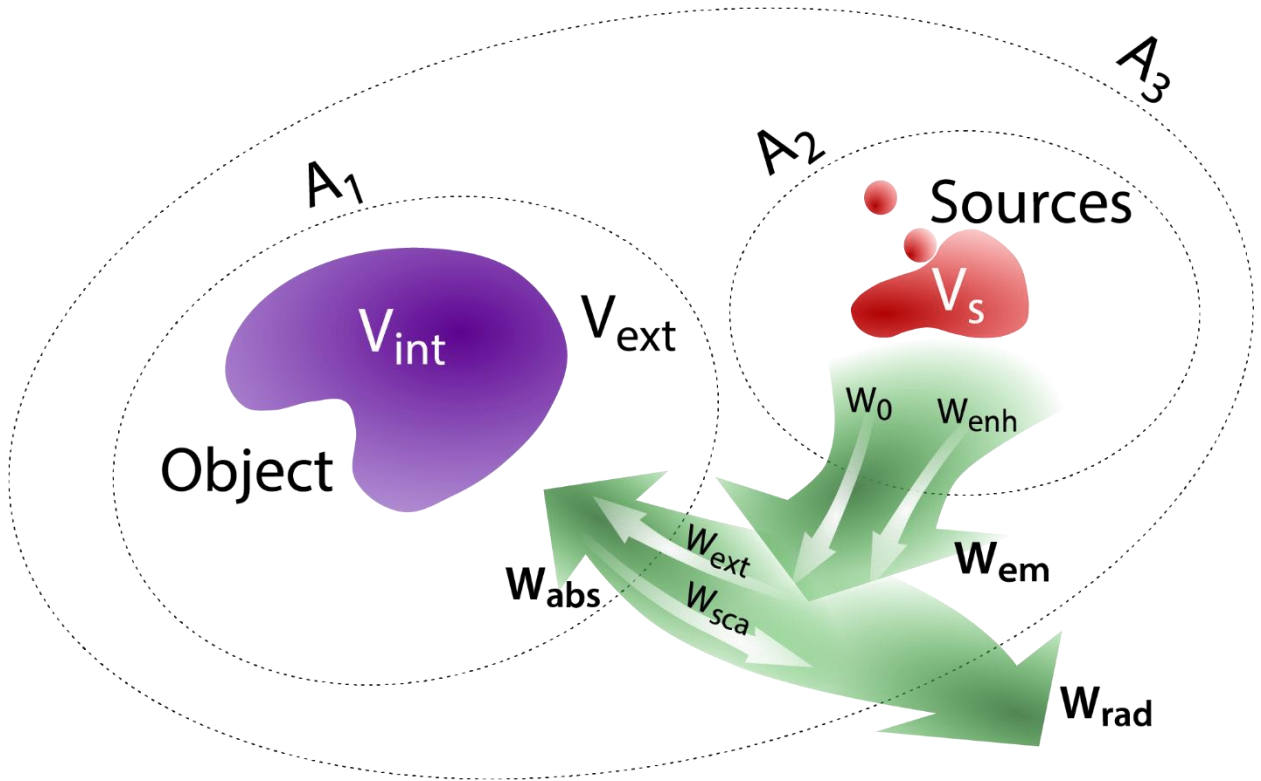


Рис. 3. Визуализация потоков энергии в подходе баланса энергии. Взято из [7].

В заключение отметим, что в задачах рассеяния плоских волн широко используются сечения C (экстинкции, поглощения, рассеяния), которые связаны с соответствующими мощностями W через интенсивность падающей волны I_0 [17]:

$$C_X = \frac{W_X}{I_0}, \quad I_0 \stackrel{\text{def}}{=} m_h \frac{\varepsilon_0 c}{2} E_0^2 = \frac{\varepsilon_h \omega}{2k} E_0^2, \quad (19)$$

где X – любой из индексов на Рис. 3, а E_0 – амплитуда падающей волны. Последняя имеет понятный физический смысл для плоских волн и, с некоторой натяжкой, для других, например, гауссовых пучков, но не для поля электрона, как в данной работе. Тем не менее, использование любой константы вместо E_0 , например, 1 в соответствующей системе единиц, позволяет обобщенно

определить любые сечения и для этого случая. Основным плюсом использования сечений является то, что они имеют размерность площади и, поэтому, тривиально преобразуются между любыми системами единиц.

3.3. Потеря энергии негармоническими источниками

В подходе баланса энергии выражения для мощностей получены для случая гармонических полей. Поля с произвольной по времени зависимостью можно представить в виде разложения по гармоникам, механизмом для такого разложения является преобразование Фурье [Ур. (52) из Приложения 1]. При этом важно отметить, что в качестве $\mathbf{E}(\mathbf{r})$ и $\mathbf{H}(\mathbf{r})$ используются амплитуды полей *на единицу частоты*, т.е. их размерности – $\text{В} \cdot \text{с}/\text{м}$ и $\text{А} \cdot \text{с}/\text{м}$, соответственно – отличаются на множитель секунды от того, что принято при рассмотрении задачи полностью в частотной области. В результате, размерность мощности в спектральной области W является $\text{Вт} \cdot \text{с}^2 = \text{Дж} \cdot \text{с}$.

Нам нужно найти полные потери энергии. Для этого вернемся во временную область и повторим переход в частотную область согласно 1.7.5 из [18]. Если $\mathbf{E}(\mathbf{r}, t)$ и $\mathbf{H}(\mathbf{r}, t)$ – напряженности электрического и магнитного полей соответственно, тогда вектор Пойнтинга определяется как

$$\mathbf{S}(\mathbf{r}, t) \stackrel{\text{def}}{=} \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) \times \mathbf{H}(\mathbf{r}, t), \quad (20)$$

и полная энергия, пришедшая или потерянная в объеме внутри замкнутой поверхности A , составит

$$\Delta E = \int_{-\infty}^{\infty} dt \oint_A d\mathbf{A} \cdot \mathbf{S}(\mathbf{r}, t). \quad (21)$$

Поменяем порядок интегрирования и воспользуемся Ур. (54) из Приложения 1, чтобы перейти в частотную область:

$$\begin{aligned} \Delta E &= \oint_A d\mathbf{A} \cdot \int_{-\infty}^{\infty} dt [\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) \times \mathbf{H}(\mathbf{r}, t)] \\ &= \frac{2}{\pi} \int_0^{\infty} d\omega \oint_A d\mathbf{A} \cdot \frac{1}{2} \text{Re}[\mathbf{E}(\mathbf{r}) \times \mathbf{H}^*(\mathbf{r})] = \frac{2}{\pi} \int_0^{\infty} d\omega W, \end{aligned} \quad (22)$$

где W – это мощность для гармонического поля из Ур. (11), выраженная через усредненный по времени вектор Пойнтинга $\mathbf{S}(\mathbf{r})$ [Ур. (10)] в подходе баланса

энергии. Ур. (22) представляет собой универсальный способ перевода мощностей, рассчитанных в частотной области (для гармонических полей) в полные потери (или передачи) энергии в результате конечных по времени процессов, таких как пролет электрона.

3.4. Поле релятивистского электрона

Представим релятивистский электрон как точечный заряд q , движущийся со скоростью v в положительном направлении вдоль оси z . Пусть в момент времени $t = 0$ заряд находится в точке с координатами (x_0, y_0, z_0) .

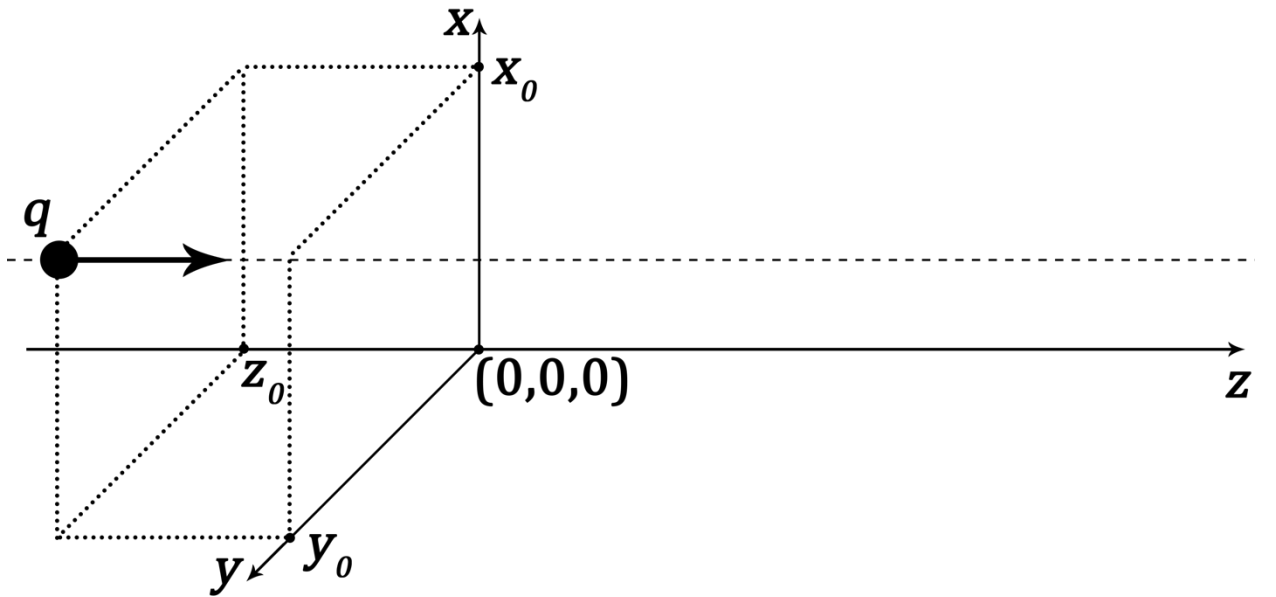


Рис. 4. Движение заряда в лабораторной системе отсчета.

Тогда плотность тока, создаваемого таким зарядом:

$$\mathbf{J}_s(\mathbf{r}, t) = qv\delta(x - x_0)\delta(y - y_0)\delta(z - z_0 - vt)\mathbf{e}_z, \quad (23)$$

где \mathbf{e}_z – единичный вектор вдоль оси z . После взятия преобразования Фурье (определенному согласно Ур. (52) из Приложения 1), получим выражение для плотности тока в частотной области

$$\mathbf{J}_s(\mathbf{r}) = q\delta(x - x_0)\delta(y - y_0) \exp\left[i\frac{\omega}{v}(z - z_0)\right]\mathbf{e}_z. \quad (24)$$

Чтобы найти падающее поле $\mathbf{E}_{inc}(\mathbf{r})$, подставим Ур. (24) в Ур. (7). Поскольку в тензоре Грина содержится ϵ_h , для различных типов сред падающее поле будет различным. Найдем падающее поле для общего случая произвольной среды ($\epsilon_h \in \mathbb{C}$):

$$\begin{aligned}
\mathbf{E}_{\text{inc}}(\mathbf{r}) &= i\omega\mu_0 \lim_{V_0 \rightarrow 0} \int_{V_s \setminus V_0} d^3\mathbf{r}' \bar{\mathbf{G}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}') \cdot \mathbf{J}_s(\mathbf{r}') - i \frac{\mathbf{J}_s(\mathbf{r})}{3\omega\epsilon_h} \\
&= i\omega\mu_0 \left(\bar{\mathbf{I}} + \frac{\nabla \otimes \nabla}{k^2} \right) \cdot \lim_{V_0 \rightarrow 0} \int_{V_s \setminus V_0} d^3\mathbf{r}' \frac{\exp(ik|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|)}{4\pi|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|} \mathbf{J}_s(\mathbf{r}') \\
&= i\omega\mu_0 \begin{pmatrix} 1 & \partial^2 \\ \frac{1}{k^2} \frac{\partial^2}{\partial x \partial z} & \\ \frac{1}{k^2} \frac{\partial^2}{\partial y \partial z} & \\ 1 + \frac{1}{k^2} \frac{\partial^2}{\partial z^2} & \end{pmatrix} I_1(\mathbf{r}), \tag{25}
\end{aligned}$$

где перестановка порядка интегрирования и дифференцирования уничтожила второе слагаемое [19] и мы продолжим вычисление интеграла

$$I_1(\mathbf{r}) \stackrel{\text{def}}{=} \lim_{V_0 \rightarrow 0} \int_{V_s \setminus V_0} d^3\mathbf{r}' \frac{\exp(ik|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|)}{4\pi|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|} J_{s,z}(\mathbf{r}') \tag{26}$$

отдельно:

$$\begin{aligned}
I_1(\mathbf{r}) &= \int_{\mathbb{R}^3} d^3\mathbf{r}' \frac{\exp(ik|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|)}{4\pi|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|} q \delta(x' - x_0) \delta(y' - y_0) \exp\left[i\frac{\omega}{v}(z' - z_0)\right] \\
&= \frac{q}{4\pi} \exp\left[i\frac{\omega}{v}(z - z_0)\right] \int_{-\infty}^{\infty} d\tilde{z} \frac{\exp\left(ik\sqrt{b^2 + \tilde{z}^2} - i\frac{\omega}{v}\tilde{z}\right)}{\sqrt{b^2 + \tilde{z}^2}}, \tag{27}
\end{aligned}$$

где мы обозначили $b \stackrel{\text{def}}{=} \sqrt{(x - x_0)^2 + (y - y_0)^2}$ и $\tilde{z} \stackrel{\text{def}}{=} z - z'$. Оставшийся интеграл обозначим $I_2(b)$ и рассмотрим отдельно. Введем переменную $u \in \mathbb{R}$ соотношением $\sinh u = \tilde{z}/b$ и воспользуемся тождеством $\cosh^2 u - \sinh^2 u = 1$:

$$\begin{aligned}
I_2(b) &= \int_{-\infty}^{\infty} d(\sinh u) \frac{\exp\left(ikb\sqrt{1 + \sinh^2 u} - i\frac{\omega b}{v}\sinh u\right)}{\sqrt{1 + \sinh^2 u}} \\
&= \int_{-\infty}^{\infty} du \exp\left[i\frac{\omega b}{v}(\beta_\epsilon \cosh u - \sinh u)\right], \tag{28}
\end{aligned}$$

где мы ввели обозначения по аналогии со стандартными из специальной теории относительности (γ_ϵ понадобится позже)

$$\beta_\epsilon \stackrel{\text{def}}{=} \frac{v}{c} m_h, \quad \gamma_\epsilon \stackrel{\text{def}}{=} \sqrt{\frac{1}{1 - \beta_\epsilon^2}} \tag{29}$$

и используется главная ветвь квадратного корня в комплексной плоскости, которая непрерывно зависит от ε_h при $0 \leq \arg \varepsilon_h < \pi$ (что мы предположили ранее – см. главу 3.2), за исключением точки $\beta_\varepsilon = 1$. При этом γ_ε лежит в первом квадранте ($0 \leq \arg \gamma_\varepsilon \leq \pi/2$) за исключением интервала $[0,1)$. В частности, $\beta_\varepsilon < 1$ (включая вакуум) и > 1 приводит к вещественному ($\gamma_\varepsilon > 1$) и мнимому ($\text{Im } \gamma_\varepsilon > 0$) γ_ε соответственно.

В случае $\text{Im } \beta_\varepsilon > 0$ мы можем использовать известное интегральное представление для функции Ганкеля первого рода $H_0^{(1)}$, см. [20] (Ур. 10.9.15) с заменой переменных $z = \omega b \beta_\varepsilon / v$ ($\text{Im } z > 0$) и $\zeta = -\omega b / v \in \mathbb{R}$, и дальнейшим выражением ее через модифицированную функцию Бесселя K_0 [20] (Ур. 10.27.8):

$$I_2(b) = \pi i H_0^{(1)} \left(\frac{\omega b}{v} \sqrt{\beta_\varepsilon^2 - 1} \right) = 2K_0 \left(\frac{\omega b}{\gamma_\varepsilon v} \right), \quad (30)$$

причем последнее равенство верно и на границе первого квадранта (для β_ε), в частности при $\beta_\varepsilon > 0$ (но $\beta_\varepsilon \neq 1$) так как и γ_ε , и главная ветвь $\sqrt{\beta_\varepsilon^2 - 1}$ непрерывны при стремлении к границе. Таким образом, доказать верность Ур. (30) и в этом случае можно предельным переходом (аналитическим продолжением) интеграла на границу квадранта. Однако, для дополнительной строгости, мы рассмотрим отдельно случаи $0 < \beta_\varepsilon < 1$ и $\beta_\varepsilon > 1$.

В случае $0 < \beta_\varepsilon < 1$ введем $w \in \mathbb{R}$ так, что

$$\tanh w = \beta_\varepsilon \Rightarrow \sinh w = \beta_\varepsilon \gamma_\varepsilon, \cosh w = \gamma_\varepsilon. \quad (31)$$

Тогда

$$\begin{aligned} I_2(b) &= \int_{-\infty}^{\infty} du \exp \left[i \frac{\omega b}{\gamma_\varepsilon v} (\sinh w \cosh u - \cosh w \sinh u) \right] \\ &= \int_{-\infty}^{\infty} du \exp \left(-i \frac{\omega b}{\gamma_\varepsilon v} \sinh u \right) = 2K_0 \left(\frac{\omega b}{\gamma_\varepsilon v} \right), \end{aligned} \quad (32)$$

где последнее равенство следует из [20] (Ур. 10.32.6). В случае $\beta_\varepsilon > 1$ мы действуем аналогично через $w \in \mathbb{R}$ такое, что

$$\coth w = \beta_\varepsilon \Rightarrow \sinh w = -i\gamma_\varepsilon, \cosh w = -i\beta_\varepsilon \gamma_\varepsilon. \quad (33)$$

Тогда

$$\begin{aligned}
I_2(b) &= \int_{-\infty}^{\infty} du \exp\left(-\frac{\omega b}{\gamma_\varepsilon v} [\cosh w \cosh u - \sinh w \sinh u]\right) \\
&= \int_{-\infty}^{\infty} du \exp\left(-\frac{\omega b}{\gamma_\varepsilon v} \cosh u\right) = 2K_0\left(\frac{\omega b}{\gamma_\varepsilon v}\right),
\end{aligned} \tag{34}$$

где последнее равенство следует из [20] (Ур. 10.32.9). Последний подход (через замену в Ур. (33) можно легко обобщить на комплексную β_ε в первом квадранте и вывести Ур. (30). Однако, прямое использование этого подхода для $0 < \beta_\varepsilon < 1$ трудоемко (требует внимательного рассмотрения поведения подынтегральной функции на бесконечности), так как быстро затухающая функция из Ур. (34) переходит в осциллирующую функцию в Ур. (32). Таким образом, случай вакуума является особым (предельным) случаем для нашего рассмотрения.

Подставляем результаты вычисления интегралов в Ур. (25) и продолжим вычисления компонент \mathbf{E}_{inc} :

$$\begin{aligned}
E_{\text{inc},x} &= i\omega\mu_0 \frac{1}{k^2} \frac{\partial}{\partial x} \frac{\partial}{\partial z} \left\{ \frac{q}{2\pi} \exp\left[i\frac{\omega}{v}(z-z_0)\right] K_0\left(\frac{\omega b}{\gamma_\varepsilon v}\right) \right\} \\
&= \frac{q\omega}{2\pi\varepsilon_h v^2 \gamma_\varepsilon} \frac{x-x_0}{b} \exp\left[i\frac{\omega}{v}(z-z_0)\right] K_1\left(\frac{\omega b}{\gamma_\varepsilon v}\right),
\end{aligned} \tag{35}$$

где воспользовались производной модифицированной функции Бесселя [21]

$$K'_0(z) = -K_1(z). \tag{36}$$

Аналогично вычисляем y -компоненту

$$E_{\text{inc},y} = \frac{q\omega}{2\pi\varepsilon_h v^2 \gamma_\varepsilon} \frac{y-y_0}{b} \exp\left[i\frac{\omega}{v}(z-z_0)\right] K_1\left(\frac{\omega b}{\gamma_\varepsilon v}\right), \tag{37}$$

и z -компоненту

$$\begin{aligned}
E_{\text{inc},z} &= i\omega\mu_0 \left(1 + \frac{1}{k^2} \frac{\partial}{\partial z} \frac{\partial}{\partial z}\right) \left\{ \frac{q}{2\pi} \exp\left[i\frac{\omega}{v}(z-z_0)\right] K_0\left(\frac{\omega b}{\gamma_\varepsilon v}\right) \right\} \\
&= i\omega\mu_0 \frac{q}{2\pi} \left(1 - \frac{\omega^2}{v^2 k^2}\right) \exp\left[i\frac{\omega}{v}(z-z_0)\right] K_0\left(\frac{\omega b}{\gamma_\varepsilon v}\right) \\
&= -i \frac{q\omega}{2\pi\varepsilon_h v^2 \gamma_\varepsilon^2} \exp\left[i\frac{\omega}{v}(z-z_0)\right] K_0\left(\frac{\omega b}{\gamma_\varepsilon v}\right).
\end{aligned} \tag{38}$$

Таким образом, мы получили поле релятивистского электрона в произвольной среде ($\varepsilon_h \in \mathbb{C}$):

$$\mathbf{E}_{\text{inc}}(\mathbf{r}) = \frac{q\omega \exp\left[i\frac{\omega}{v}(z - z_0)\right]}{2\pi\varepsilon_h(\omega)v^2\gamma_\varepsilon} \begin{pmatrix} \frac{x - x_0}{b} K_1\left(\frac{\omega b}{\gamma_\varepsilon v}\right) \\ \frac{y - y_0}{b} K_1\left(\frac{\omega b}{\gamma_\varepsilon v}\right) \\ -\frac{i}{\gamma_\varepsilon} K_0\left(\frac{\omega b}{\gamma_\varepsilon v}\right) \end{pmatrix}. \quad (39)$$

Мы привели вывод для поля в наиболее общем случае произвольной среды, при этом разобрав частный случай непоглощающей среды ($\varepsilon_h \in \mathbb{R}$). Также был проведен вывод для вакуума в квазистатическом приближении (без задержки распространения сигнала) с использованием $k|\mathbf{r} - \mathbf{r}'| \rightarrow 0$ предела тензора Грина (результаты не приведены). Во всех случаях конечные выражения совпали с уже известными из литературы [12]. При этом в литературе для поиска поля в перечисленных различных случаях использовались различные подходы, в нашей работе поле во всех случаях было вычислено в рамках одного подхода ОИУ.

3.5. Собственные потери энергии электроном

Чтобы найти собственные потери энергии электроном мы ограничимся непоглощающей средой ($\varepsilon_h \in \mathbb{R}$). Подставим Ур. (24) в Ур. (13):

$$\begin{aligned} W_0 &= \frac{\omega\mu_0}{2} \iint_{V_s} d^3\mathbf{r} d^3\mathbf{r}' \mathbf{J}_s^*(\mathbf{r}) \cdot \bar{\mathbf{G}}^I(\mathbf{r}, \mathbf{r}') \cdot \mathbf{J}_s(\mathbf{r}') \\ &= \frac{\omega\mu_0 q^2}{8\pi} \iint_{-\infty}^{\infty} dz dz' \exp\left[i\frac{\omega}{v}z\right] \left(1 + \frac{1}{k^2} \frac{\partial^2}{\partial z^2}\right) \frac{\sin[k(z' - z)]}{z' - z} \\ &\Rightarrow \frac{\partial W_0}{\partial z} = \frac{\omega\mu_0 q^2}{8\pi} I_3(\beta_\varepsilon), \end{aligned} \quad (40)$$

где мы неявно использовали $k \in \mathbb{R}$ в выражении для $\bar{\mathbf{G}}^I(\mathbf{r}, \mathbf{r}')$, перешли к потерям на единицу длины и выделили элементарный интеграл $I_3(\beta_\varepsilon)$. Для его вычисления заменим в операции дифференцирования z на z' и обозначим $u \stackrel{\text{def}}{=} \omega(z' - z)/v$:

$$\begin{aligned}
I_3(\beta_\varepsilon) &\stackrel{\text{def}}{=} \int_{-\infty}^{\infty} du \exp(iu) \left(1 + \frac{1}{\beta_\varepsilon^2} \frac{\partial^2}{\partial u^2} \right) \frac{\sin(\beta_\varepsilon u)}{u} \\
&= \left(1 - \frac{1}{\beta_\varepsilon^2} \right) \int_{-\infty}^{\infty} du \exp(iu) \frac{\sin(\beta_\varepsilon u)}{u} \\
&= \frac{1}{2\beta_\varepsilon^2 \gamma_\varepsilon^2} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{du}{u} \{ \sin[(\beta_\varepsilon - 1)u] + \sin[(\beta_\varepsilon + 1)u] \} \\
&= \frac{\pi}{2\beta_\varepsilon^2 \gamma_\varepsilon^2} [\text{sgn}(\beta_\varepsilon - 1) + 1],
\end{aligned} \tag{41}$$

где мы сначала два раза проинтегрировали по частям, а потом использовали известный предел для интегрального синуса. При этом важно, что интегралы сходятся на бесконечности из-за осциллирующего ядра (так как $\beta_\varepsilon \neq 1$), убывающего как $1/u$, а подынтегральная функция регулярна в нуле, в том числе если честно применить производные.

Подставляя результат вычисления I_3 в Ур. (40), получаем, что в вакууме или не очень плотной среде ($\beta_\varepsilon \leq 1$)

$$W_0 = 0, \tag{42}$$

что известно из закона сохранения энергии: свободно движущийся в вакууме заряд не испытывает потерь энергии. При этом, строго говоря, значение для $\beta_\varepsilon = 1$ получается предельным переходом (но предел одинаков с обеих сторон).

Для более плотной среды ($\beta_\varepsilon \geq 1$) скорость заряда превышает скорость света в такой среде, и

$$\frac{\partial W_0}{\partial z} = \frac{1}{8\varepsilon_0} \frac{q^2}{c^2} \omega \left(1 - \frac{c^2}{v^2 \varepsilon_h} \right), \tag{43}$$

а собственные потери энергии, согласно Ур. (22), составят

$$\frac{\partial}{\partial z} \Delta E_0 = \frac{1}{4\pi\varepsilon_0} \frac{q^2}{c^2} \int_0^\infty d\omega \omega \left(1 - \frac{c^2}{v^2 \varepsilon_h} \right), \tag{44}$$

что совпадает с известной формулой Франка-Тамма [22] для случая излучения Вавилова-Черенкова [23].

В произвольной среде ($\varepsilon_h \in \mathbb{C}$) интеграл в выражении для W_0 будет расходиться из-за сингулярности в точке положения бесконечно малого заряда. В

частности, $\bar{\mathbf{G}}^I(\mathbf{r}, \mathbf{r}')$ будет расходиться при $\mathbf{r} \rightarrow \mathbf{r}'$. Различные способы учесть размер электрона и получить приближенные выражения рассмотрены в [12], но мы пока этот вопрос не рассматриваем. При этом, в случае $\varepsilon_h \in \mathbb{R}$ мы смогли строго вычислить интегралы с учетом возможных сингулярностей, что еще раз доказывает универсальность описания баланса энергии на основе ОИУ в частотной области.

3.6. Вынужденные потери энергии электроном

Чтобы выразить вынужденные потери энергии электроном, возьмем Ур. (17) и преобразуем его, подразумевая самый общий случай произвольной среды ($\varepsilon_h \in \mathbb{C}$). Воспользуемся общим свойством транспонирования тензора:

$$\forall \mathbf{a}, \mathbf{b}: \mathbf{a} \cdot \bar{\mathbf{A}} \cdot \mathbf{b} = \mathbf{b} \cdot \bar{\mathbf{A}}^T \cdot \mathbf{a}, \quad (45)$$

симметрией тензора Грина $\bar{\mathbf{G}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}') = [\bar{\mathbf{G}}(\mathbf{r}', \mathbf{r})]^T$ и поменяем местами порядок интегрирования:

$$\begin{aligned} W_{\text{enh}} &= -\frac{\omega^2 \mu_0}{2} \int_{V_{\text{int}}} d^3 \mathbf{r} \int_{V_s} d^3 \mathbf{r}' \operatorname{Re}[\mathbf{P}(\mathbf{r}) \cdot \bar{\mathbf{G}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}') \cdot \mathbf{J}_s^*(\mathbf{r}')] \\ &= -\frac{\omega}{2} \int_{V_{\text{int}}} d^3 \mathbf{r} \operatorname{Im}[\mathbf{E}_1(\mathbf{r}) \cdot \mathbf{P}(\mathbf{r})], \end{aligned} \quad (46)$$

где мы ввели вспомогательное поле, равное падающему полю для сопряженных источников, аналогично Ур. (25):

$$\mathbf{E}_1(\mathbf{r}) \stackrel{\text{def}}{=} i\omega\mu_0 \lim_{V_0 \rightarrow 0} \int_{V_s \setminus V_0} d^3 \mathbf{r}' \bar{\mathbf{G}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}') \cdot \mathbf{J}_s^*(\mathbf{r}') - i \frac{\mathbf{J}_s^*(\mathbf{r})}{3\omega\varepsilon_h}. \quad (47)$$

Для его вычисления заметим, что сопряжение \mathbf{J}_s^* в Ур. (24) эквивалентно замене $z - z_0 \rightarrow z_0 - z$, что в Ур. (27) влияет только на знак внутри экспоненты, так как внутри последнего интеграла обращение направления интегрирования $\tilde{z} \rightarrow -\tilde{z}$ не изменяет интеграл. Поэтому, мы напрямую используем Ур. (30) и получаем аналогично Ур. (39)

$$\mathbf{E}_1(\mathbf{r}) = -\frac{q\omega \exp\left[-i\frac{\omega}{v}(z-z_0)\right]}{2\pi\epsilon_h v^2 \gamma_\epsilon} \begin{pmatrix} \frac{x-x_0}{b} K_1\left(\frac{\omega b}{\gamma_\epsilon v}\right) \\ \frac{y-y_0}{b} K_1\left(\frac{\omega b}{\gamma_\epsilon v}\right) \\ \frac{i}{\gamma_\epsilon} K_0\left(\frac{\omega b}{\gamma_\epsilon v}\right) \end{pmatrix} \quad (48)$$

$$= \begin{pmatrix} -E_{\text{inc},x}(\mathbf{r}) \\ -E_{\text{inc},y}(\mathbf{r}) \\ E_{\text{inc},z}(\mathbf{r}) \end{pmatrix} \exp\left[-2i\frac{\omega}{v}(z-z_0)\right],$$

где дополнительный минус возникает от каждой производной по z .

Особенность выражения (46) состоит в том, что интегрирование ведется по объему частицы (а не источника), поле $\mathbf{E}_1(\mathbf{r})$ выражается элементарными действиями через поле источника $\mathbf{E}_{\text{inc}}(\mathbf{r})$ (которое нам известно), а величина $\mathbf{P}(\mathbf{r})$ эффективно вычисляется в DDA. Более того, полученное выражение (46) для W_{enh} очень схоже с выражением (18) для W_{ext} и вычисляется аналогичным ему образом.

Выражение (46) позволяет вычислять вынужденные потери энергии электроном в произвольной среде ($\epsilon_h \in \mathbb{C}$), что является новым результатом. Ранее вынужденные потери, выраженные интегралом по объему частицы, были известны только для частного случая взаимодействия в вакууме [10,24]. Этот частный случай описывается выражением $W_{\text{enh}} = W_{\text{ext}}$, что в нашем общем подходе следует из $\mathbf{E}_1(\mathbf{r}) = -\mathbf{E}_{\text{inc}}^*(\mathbf{r})$ для $\gamma_\epsilon \in \mathbb{R}$ (очевидно из Ур. (48) и вещественности аргументов модифицированных функций Бесселя) и Ур. (46).

Таблица 2. Собственные и вынужденные потери энергии релятивистским зарядом, полученные в данной работе через подход баланса энергии.

Среда	Собственные потери W_0	Вынужденные потери W_{enh}
Вакуум, $\epsilon_h \equiv \epsilon_0$	0	Равны W_{ext}
Среда без затухания, $\epsilon_h \in \mathbb{R}$	Формула Франка-Тамма (Черенковское излучение)	Выражены аналогично W_{ext}
Произвольная среда, $\epsilon_h \in \mathbb{C}$	Неопределенность, связанная с сингулярностью	Выражены аналогично W_{ext}

3.7. Вероятность потерь энергии электроном

Для построения спектра потерь энергии необходимо найти функцию, описывающую вероятность потери энергии электроном. Для этого выразим полные потери энергии одним электроном, применив Ур. (22) к W_{enh} из Ур. (46).

Для одного электрона это будет средняя энергия вынужденных потерь:

$$\Delta E_{\text{enh}} = \frac{2}{\pi} \int_0^{\infty} d\omega W_{\text{enh}} \stackrel{\text{def}}{=} \int_0^{\infty} d(\hbar\omega) \Gamma_{\text{EELS}}(\hbar\omega) \hbar\omega, \quad (49)$$

где последнее равенство определяет функцию плотности вероятности случайной величины $\hbar\omega$, чтобы ΔE_{enh} было мат. ожиданием данной величины. Подстановкой Ур. (46) получаем

$$\Gamma_{\text{EELS}}(\hbar\omega) = \frac{2 W_{\text{enh}}}{\pi \hbar^2 \omega} = -\frac{1}{\pi \hbar^2} \int_{V_{\text{int}}} d^3 \mathbf{r}' \text{Im}[\mathbf{E}_1(\mathbf{r}') \cdot \mathbf{P}(\mathbf{r}')], \quad (50)$$

что в случае вакуума сводится к уже известному выражению [24,25].

Часто в экспериментах потери энергии $\delta E = \hbar\omega$ выражают в эВ, а Γ_{EELS} – в эВ⁻¹. Соответствующие выражения получаются частичным преобразованием единиц измерения:

$$\begin{aligned} \Gamma_{\text{EELS}}(\delta E[\text{эВ}])[\text{эВ}^{-1}] &= \frac{2}{\pi} \frac{1}{\delta E[\text{эВ}]} \frac{W_{\text{enh}}[\text{Дж} \cdot \text{с}]}{\hbar[\text{Дж} \cdot \text{с}]} \\ &= \frac{1}{\hbar[\text{эВ} \cdot \text{с}]} \left\{ -\frac{1}{\pi \hbar} \int_{V_{\text{int}}} d^3 \mathbf{r}' \text{Im}[\mathbf{E}_1(\mathbf{r}') \cdot \mathbf{P}(\mathbf{r}')] \right\} [\text{с}], \end{aligned} \quad (51)$$

где в фигурные скобки взята величина, результат вычисления которой не зависит от системы единиц (СИ, СГС), если не изменяется единица времени.

4. Моделирование

4.1. Реализация в коде ADDA

Для моделирования было доработано ПО с открытым исходным кодом ADDA [9], разработка ведется в отдельной ветке [26]. В код была добавлена возможность генерировать поле релятивистского электрона в соответствие с выражениями (39): пользователь задает кинетическую энергию электрона в кэВ, координаты (x_0, y_0) в лабораторной системе отсчета и коэффициент преломления среды m_h . Реализация в коде выполнена для $m_h \in \mathbb{C}$, но в параметрах командной строки пока поддерживается только $m_h \in \mathbb{R}$.

Для вычисления функции Бесселя $K_\nu(z)$ была подключена библиотека [27], использующая алгоритмы из [28]. Всестороннего тестирования точности вычисления функций Бесселя данной библиотекой не проводилось, но было проведено сравнение для различных значений аргумента из области характерных значений. Значения сравнивались с ПО Wolfram Mathematica, во всех случаях было получено соответствие в 14-16 знаках после запятой.

При вызове программы пользователь задает частицу, для которой нужно провести расчеты, и ее параметры, включая показатель преломления относительно среды m (для неоднородной частицы будет несколько показателей преломления, вплоть до различных в каждом элементарном объеме), а также длину волны λ , соответствующую нужному значению ω . Размеры частицы и длина волны задаются в нанометрах.

Чтобы построить спектр, необходимо многократно вызывать программу ADDA с одними и теми же параметрами электронного пучка и геометрии частицы, но варьируя значение ω , а также показатели преломления $m_h(\omega)$ и $m(\omega)$, если они зависят от частоты ω . Для автоматизации этого процесса был написан bash-скрипт, который считывает из указанного ему файла значения энергии $\hbar\omega$ в эВ и соответствующий ей коэффициент преломления $m_p(\omega)$. Одним из параметров вызова скрипта является коэффициент преломления

среды m_h (который пока реализован только без зависимости от ω , что справедливо, например, для стекла или воды). Скрипт конвертирует эВ в соответствующую λ , которую приходится делить на m_h , поскольку ADDA не позволяет задать коэффициент преломления среды в командной строке, но активно оперирует волновым числом k , в котором он содержится. Далее скрипт запускает программу ADDA по каждому значению с коэффициентом преломления частицы $m(\omega) = m_p(\omega)/m_h$. Результаты моделирования, в частности Γ_{EELS} в эВ^{-1} согласно Ур. (51), сохраняются в отдельных директориях. Затем запускается следующий скрипт, который собирает нужные данные из всех получившихся директорий и оформляет в текстовый файл *result.txt* потерю энергии в эВ и вероятность этой потери. По данным из *result.txt* в любой удобной программе пользователь строит спектр потерь энергии электроном.

4.2. Особенности реализации в коде

Размеры частицы и траектория электрона задаются в нанометрах, что удобно для пользователя, но накладывает ограничения по сравнению с другими режимами работы ADDA, где эти единицы могут быть любыми.

ADDA использует внутри себя Гауссову (симметричную СГС) систему единиц, т.е. формулы немного отличаются от тех, что приведены в данной работе для системы единиц СИ. В частности, падающее поле электрона вычисляется по Ур. (39) с дополнительным множителем $4\pi\epsilon_0$ (и все переменные, включая расстояния до пучка электронов, переведены в Гауссову систему единиц). Это эквивалентно умножению величины, посчитанной в СИ, на численное значение $\sqrt{40\pi\epsilon_0}$.

Вычисленное значение интеграла в Ур. (51) изначально получается в нм^3 , оно переводится в Гауссову систему умножением на 10^{-21} . В этой же системе берется численное значение \hbar внутри фигурной скобки в Ур. (51).

4.3. Сравнение с точными решениями

Для задачи рассеяния электромагнитной волны на шарообразной частице существуют аналитические решения, основанные на теории Лоренца-Ми [17].

Расчеты по теории Лоренца-Ми применительно к EELS проведены в работах [29,30], их авторами создан веб-сайт [31], на котором можно построить спектр для шарообразной частицы с нужными параметрами.

На Рис. 5 приведем пример спектров, полученных в ADDA и по теории Лоренца-Ми. В обоих случаях была взята частица в форме шара из серебра радиусом 5 нм, находящаяся в вакууме. Частотная зависимость коэффициента преломления серебра в обоих случаях взята из [32]. Электрон с кинетической энергией 100 кэВ пролетает вблизи шара на расстоянии 6 нм от его центра. Дискретизация шара в ADDA задана решеткой из 128 диполей по каждой оси.

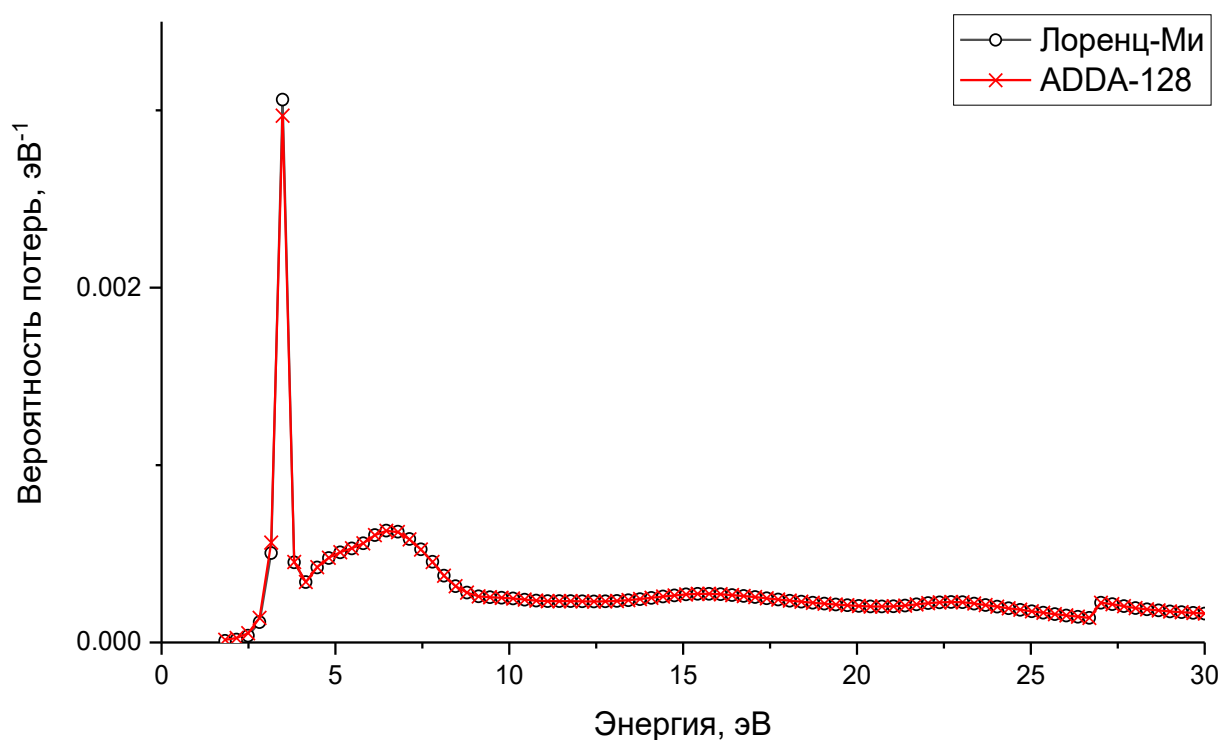


Рис. 5. Спектры EELS, полученные точным решением по теории Лоренца-Ми и моделированием в ADDA (решетка из 128 диполей по каждой оси). Электрон с энергией 100 кэВ пролетает в вакууме в 6 нм от центра шара из серебра с радиусом 5 нм.

Как видно из графика, результат моделирования почти полностью повторяет полученный точным решением спектр. Несоответствия в области энергий > 4 эВ составляют менее 1%. Несоответствия в области < 4 эВ можно объяснить близостью коэффициента преломления серебра в этом диапазоне к мнимой оси.

На Рис. 6 продемонстрирована сходимость DDA к точному решению в зависимости от глубины дискретизации. Приведены результаты моделирования для решеток из 2, 8, 32 и 128 диполей по каждой оси.

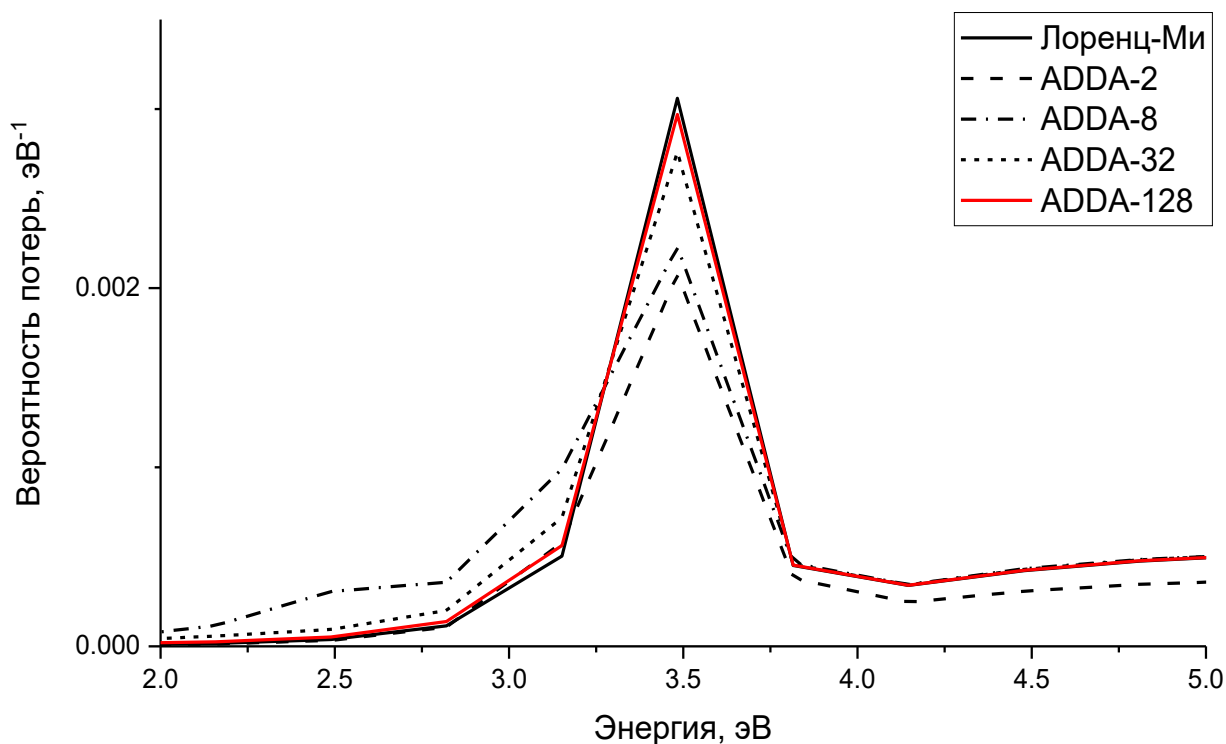


Рис. 6. Спектры EELS, полученные точным решением по теории Лоренца-Ми и моделированием в ADDA с дискретизацией от 2 до 128 диполей по каждой оси. Электрон с энергией 100 кэВ пролетает в вакууме в 6 нм от центра шара из серебра с радиусом 5 нм.

Результат вполне ожидаем: чем больше глубина дискретизации, тем ближе результат к точному решению.

Для той же ситуации (серебряный шар радиусом 5 нм, электрон с энергией 100 кэВ пролетает в 6 нм от его центра) был построен спектр, когда взаимодействие происходит в стекле ($m_n = 1.5$). Сравнить с точным решением для случая взаимодействия в среде не представляется возможным, поскольку точные решения не описаны в литературе. Поэтому на Рис. 7 представлен спектр, построенный в ADDA для стекла, и спектр, построенный по теории Лоренца-Ми для вакуума.

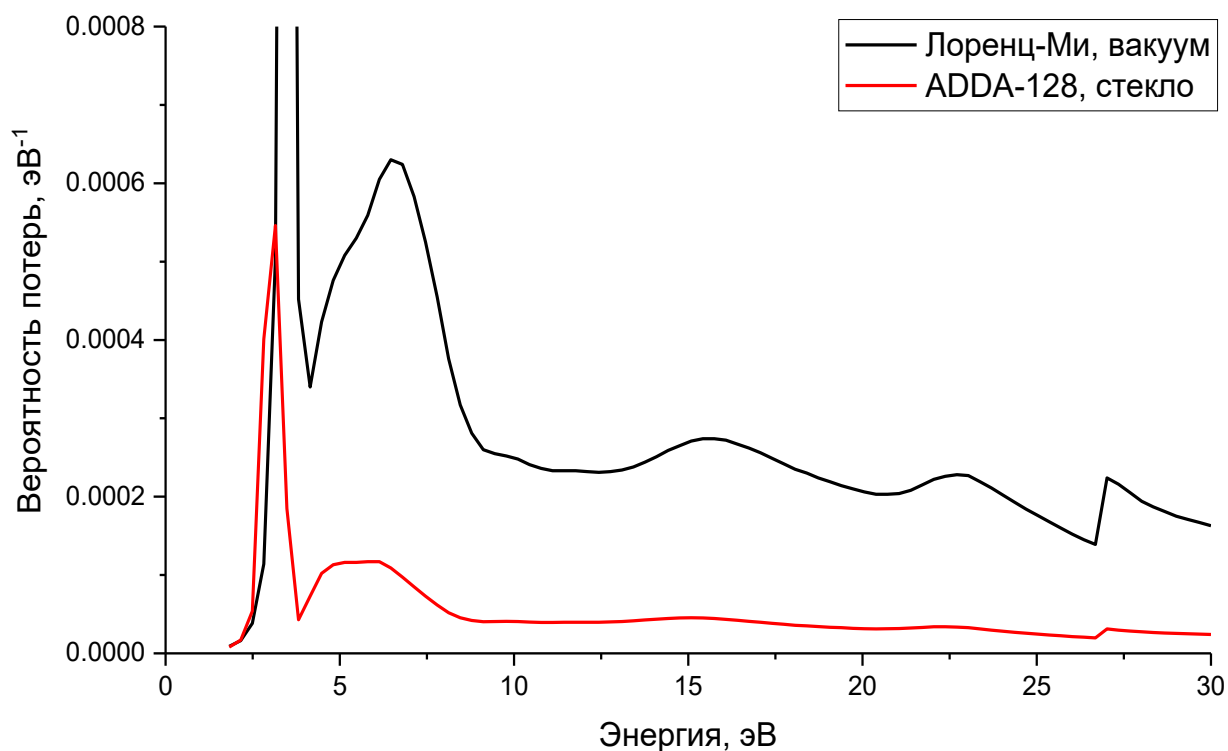


Рис. 7. Спектры EELS, полученные точным решением по теории Лоренца-Ми в вакууме и моделированием в ADDA в стекле с коэффициентом преломления $n = 1.5$. Электрон с энергией 100 кэВ пролетает в 6 нм от центра шара из серебра с радиусом 5 нм.

На спектре можно видеть, что в стекле вероятность потерь заметно уменьшилась, а пики сдвинулись в сторону более низких энергий. Данный график иллюстрирует новые возможности в моделировании EELS, которые могут пригодиться для нестандартных режимов измерений этого явления.

5. Заключение

В данной работе все величины, необходимые для моделирования EELS, получены в подходе баланса энергии. Данный подход показал свою универсальность, в то время как в классической литературе использовалось как минимум три разных подхода. Все полученные в данной работе выражения либо совпадают с известными из литературы, либо являются новыми – выражения для вынужденных потерь в среде в литературе не описаны. Предложено общее выражение (46) для вычисления вынужденных потерь энергии электроном, которое можно эффективно вычислять в DDA. Это выражение является верным для произвольной (даже поглощающей) среды, а в случае вакуума сводится к уже известному.

До сих пор все инструменты для моделирования EELS были ограничены частным случае вакуума в качестве среды. Полученные в данной работе результаты позволяют проводить моделирование EELS в произвольной среде, что особенно важно, поскольку ЛПП сильно зависят от свойств окружающей среды. На практике это позволит изучать случай нахождения частиц (или пустот) в толстых пластинах.

Реализованный в отдельной ветке код для моделирования EELS в открытом ПО ADDA позволяет моделировать спектры EELS в произвольной непоглощающей среде. Данный код публично доступен всем желающим начать проводить вычисления. В будущем планируется перенос этой реализации в основную ветку ADDA.

6. Список литературы

1. Maier S.A., Atwater H.A. Plasmonics: Localization and guiding of electromagnetic energy in metal/dielectric structures // *Journal of Applied Physics*. American Institute of Physics AIP, 2005. Vol. 98, № 1. P. 011101.
2. Cherqui C. et al. Characterizing localized surface plasmons using electron energy-loss spectroscopy // *Annu. Rev. Phys. Chem.* 2016. Vol. 67, № 1. P. 331–357.
3. Hofer F. et al. Fundamentals of electron energy-loss spectroscopy // *IOP Conf. Ser.: Mater. Sci. Eng.* 2016. Vol. 109. P. 012007.
4. Egerton R.F. Electron energy-loss spectroscopy in the TEM // *Rep. Prog. Phys.* 2009. Vol. 72, № 1. P. 016502.
5. Yurkin M.A., Hoekstra A.G. The discrete dipole approximation: an overview and recent developments // *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer.* 2007. Vol. 106, № 1–3. P. 558–589.
6. Mishchenko M.I., Yurkin M.A. Impressed sources and fields in the volume-integral-equation formulation of electromagnetic scattering by a finite object: A tutorial // *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer.* 2018. Vol. 214. P. 158–167.
7. Moskalensky A.E., Yurkin M.A. Energy budget and optical theorem for scattering of source-induced fields // *Phys. Rev. A.* 2019. Vol. 99. P. 053824.
8. Draine B.T., Flatau P.J. Discrete-dipole approximation for scattering calculations // *J. Opt. Soc. Am. A.* 1994. Vol. 11, № 4. P. 1491–1499.
9. Yurkin M.A., Hoekstra A.G. The discrete-dipole-approximation code ADDA: capabilities and known limitations // *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer.* 2011. Vol. 112, № 13. P. 2234–2247.
10. Bigelow N.W. et al. Characterization of the electron- and photon-driven plasmonic excitations of metal nanorods // *ACS Nano.* 2012. Vol. 6, № 8. P. 7497–7504.
11. Geuquet N., Henrard L. EELS and optical response of a noble metal nanoparticle in the frame of a discrete dipole approximation // *Ultramicroscopy.* 2010. Vol. 110, № 8. P. 1075–1080.

12. Jackson J.D. Classical Electrodynamics. 3rd edition. New York: Wiley, 1998. 832 p.
13. Yurkin M.A., Mishchenko M.I. Volume integral equation for electromagnetic scattering: Rigorous derivation and analysis for a set of multilayered particles with piecewise-smooth boundaries in a passive host medium // Phys. Rev. A. 2018. Vol. 97, № 4. P. 043824.
14. Mishchenko M.I. Electromagnetic Scattering by Particles and Particle Groups: An Introduction. Cambridge, UK: Cambridge University Press, 2014. 450 p.
15. Mishchenko M.I. Electromagnetic scattering by a fixed finite object embedded in an absorbing medium // Opt. Express. 2007. Vol. 15, № 20. P. 13188–13202.
16. Mishchenko M.I., Yurkin M.A. Co- and counter-propagating wave effects in an absorbing medium // J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer. 2020. Vol. 242. P. 106688.
17. Bohren C.F., Huffman D.R. Absorption and Scattering of Light by Small Particles. New York: Wiley, 1983. 544 p.
18. Smith G.S. An Introduction to Classical Electromagnetic Radiation. Cambridge University Press, 1997. 678 p.
19. Yurkin M.A., Mishchenko M.I. Volume integral equation for electromagnetic scattering: Rigorous derivation and analysis for a set of multilayered particles with piecewise-smooth boundaries in a passive host medium // Phys. Rev. A. 2018. Vol. 97, № 4. P. 043824.
20. [DLMF] NIST Digital Library of Mathematical Functions. Release 1.0.24 / ed. Olver F.W.J. et al.
21. DLMF: 10.29 Recurrence Relations and Derivatives [Electronic resource]. URL: <https://dlmf.nist.gov/10.29>.
22. Frank I.M., Tamm I.E. Coherent visible radiation of fast electrons passing through matter // Compt.Rend.Acad.Sci.URSS. 1937. Vol. 14, № 3. P. 109–114.

23. Cherenkov P.A. Visible Radiation Produced by Electrons Moving in a Medium with Velocities Exceeding that of Light // *Phys. Rev.* 1937. Vol. 52, № 4. P. 378–379.
24. Geuquet N. User Guide for DDEELS v2. P. 10.
25. García de Abajo F.J. Optical excitations in electron microscopy // *Rev. Mod. Phys.* 2010. Vol. 82, № 1. P. 209–275.
26. Kichigin A. ADDA for EELS simulations [Electronic resource]. URL: <https://github.com/alkichigin/adda>.
27. SPECIAL_FUNCTIONS - Evaluation of Special Functions [Electronic resource]. URL: https://people.sc.fsu.edu/~jburkardt/f_src/special_functions/special_functions.html.
28. Zhang S., Jin J.-M. *Computation of Special Functions*. Wiley, 1996. 752 p.
29. Garcia de Abajo J., Howie A. Relativistic electron energy loss and electron-Induced photon emission in inhomogeneous dielectrics // *Physical Review Letters - PHYS REV LETT*. 1998. Vol. 80. P. 5180–5183.
30. García de Abajo F.J. Relativistic energy loss and induced photon emission in the interaction of a dielectric sphere with an external electron beam // *Phys. Rev. B*. 1999. Vol. 59, № 4. P. 3095–3107.
31. García de Abajo - EELS in the sphere [Electronic resource]. URL: <http://widgets.nanophotonics.es/sphere/index.html>.
32. Palik E.D. *Handbook of Optical Constants of Solids*. Academic Press, 1985. 832 p.

Приложение 1. Теорема Парсеваля

Определим преобразование Фурье как

$$\begin{aligned} f(\omega) &= \int_{-\infty}^{\infty} f(t)e^{-i\omega t} dt, \\ f(t) &= \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} f(\omega)e^{i\omega t} d\omega. \end{aligned} \tag{52}$$

Для действительных функций $f(t)$ и $g(t)$ выполняется

$$\int_{-\infty}^{\infty} f(t)g(t) dt = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} f(\omega)g^*(\omega) d\omega, \tag{53}$$

что является обобщением теоремы Парсеваля, также известно как теорема Планшереля. Поскольку для фурье-образов действительных функций выполняется $f(-\omega) = f^*(\omega)$, можем разбить интервал интегрирования и, используя замену $\omega \rightarrow -\omega$, переписать Ур. (53) как

$$\int_{-\infty}^{\infty} f(t)g(t) dt = \frac{1}{\pi} \int_0^{\infty} \text{Re}[f(\omega)g^*(\omega)] d\omega. \tag{54}$$