

**ГОСУДАРСТВЕННЫЙ КОМИТЕТ РСФСР ПО ДЕЛАМ НАУКИ И ВЫСШЕЙ ШКОЛЫ**  
**Ордена Трудового Красного Знамени**  
**научно-исследовательский радиофизический институт (НИРФИ)**

**П р е п р и в т  № 338**

**О СПЕКТРАХ ПОГЛОЩЕНИЯ ЭЛЕКТРОМАГНИТНОГО ИЗЛУЧЕНИЯ В ТОНКИХ  
ДИСПЕРСНЫХ ПЛЕНКАХ**

**А. А. Харов**  
**И. Г. Кондратьев**  
**Е. Д. Кузнецова**

**Нижний Новгород 1991**

**Харов А. А., Кондратьев И. Г.,  
Кузнецова Е. Д.**

**О СПЕКТРАХ ПОГЛОЩЕНИЯ ЭЛЕКТРОМАГНИТНОГО ИЗЛУЧЕНИЯ В ТОНКИХ  
ДИСПЕРСНЫХ ПЛЕНКАХ // Препринт № 338 - Нижний Новгород:  
НИРФИ - 1991 - 12 с.**

**УДК 535.9**

Теоретически исследуются спектры поглощения тонких дисперсных пленок, состоящих из одинаковых макроскопических электрически нейтральных сферических частиц. Особое внимание уделяется области сильного поглощения, наблюдаемой только в *p*-поляризованном свете. Обсуждаются условия ее существования и соответствующий механизм резонансного поглощения. Теоретические выводы иллюстрируются численно рассчитанными спектрами поглощения серебряных частиц размером  $5 + 10 \text{ нм}$ , взвешенных в диэлектрической матрице.

1. Экспериментальное исследование спектров поглощения электромагнитного излучения тонких пленок, имеющих дисперсную структуру, часто демонстрируют наличие двух линий поглощения [1-3]. Одна из этих линий наблюдается независимо от поляризации света, в то время как другая только при  $p$ -поляризации.

Спектры поглощения тонких дисперсных пленок исследуются в течение многих лет, и существует несколько теоретических интерпретаций наблюдаемых резонансов. Так, согласно теории Максвелл-Гарнетта (МГ), линия поглощения, наблюдаемая при падении на дисперсную среду волн любой поляризации, в том числе и при нормально падающем свете, обусловлена возбуждением колебаний поверхностного заряда в малых частицах, составляющих дисперсную пленку. Что касается двух пиков поглощения  $p$ -поляризованного света, то в [1, 4] это явление объясняется анизотропией дипольных взаимодействий частиц, а в [2, 3] несферичностью этих частиц.

В настоящей работе обсуждается механизм резонансного поглощения  $p$ -поляризованного электромагнитного излучения в тонких дисперсных пленках, отвечающий линии поглощения, наблюдаемой только в  $p$ -поляризованном свете; выяснены условия, при которых

данный механизм может играть существенную роль. Конкретные вычисления и оценки в работе приводятся для практически важного случая гранулированных пленок серебра.

2. Дисперсная среда, состоящая из частиц, размеры которых и расстояния между которыми малы по сравнению с длиной падающей электромагнитной волны  $\lambda_0$ , в случае, когда концентрация диспергированной фазы сравнительно мала, может быть описана с помощью эффективной диэлектрической проницаемости  $\epsilon_{eff}$ , определяемой известной формулой МГ:

$$\frac{\epsilon_{eff} - \epsilon_n}{\epsilon_{eff} + 2\epsilon_n} = \rho \frac{\epsilon_p - \epsilon_n}{\epsilon_p + 2\epsilon_n}, \quad (1)$$

где  $\epsilon_p = \epsilon_1 - i\epsilon_2$  - диэлектрическая проницаемость частиц,  $\epsilon_n$  - диэлектрическая проницаемость окружающей среды,  $\rho$  - объемная концентрация частиц (фактор заполнения). Согласно (1) действительная и мнимая компоненты эффективной диэлектрической проницаемости имеют вид:

$$Re(\epsilon_{eff}) = \epsilon_n \left\{ 1 + 3\rho \frac{(\epsilon_1 - \epsilon_n)(\epsilon_1(1-\rho) + \epsilon_n(2+\rho)) + \epsilon_2^2(1-\rho)}{(\epsilon_1(1-\rho) + \epsilon_n(2+\rho))^2 + \epsilon_2^2(1-\rho)^2} \right\}, \quad (2)$$

$$Im(\epsilon_{eff}) = \frac{9\rho\epsilon_2\epsilon_n}{(\epsilon_1(1-\rho) + \epsilon_n(2+\rho))^2 + \epsilon_2^2(1-\rho)^2}. \quad (3)$$

На рис. 1 изображены зависимости  $Re(\epsilon_{eff}(\lambda_0))$  и  $Im(\epsilon_{eff}(\lambda_0))$  зависимости серебряных частиц. Для диэлектрической проницаемости  $\epsilon_p(\omega)$  частиц использованы экспериментально полученные значения проницаемости массивного серебра,  $\epsilon_b(\omega)$ , [7, 8], модифицированные с учетом дополнительного механизма затухания, обусловленного

соударениями электронов проводимости с поверхностью частиц [9]:

$$\epsilon_p(\omega) = \epsilon_b(\omega) + \frac{\omega_p^2}{\omega(\omega - i/\tau_p)} - \frac{\omega_p^2}{\omega(\omega - i/\tau)} . \quad (4)$$

Здесь  $\omega_p$ ,  $\tau_p$ ,  $\epsilon_b$  - экспериментальные значения соответственно плазменной частоты, коэффициента затухания и диэлектрической проницаемости массивного серебра;  $1/\tau =$

$= 1/\tau_p + v_F/R$ ,  $v_F$  -

скорость Ферми,

$R$  - радиус частиц:

$\omega_p \approx 1.38 \times 10^{16} \text{ с}^{-1}$ ,

$\tau_p \approx 3.7 \times 10^{-14} \text{ с}$ ,

$v_F \approx 1.4 \times 10^8 \text{ см} \cdot \text{с}^{-1}$

[9].

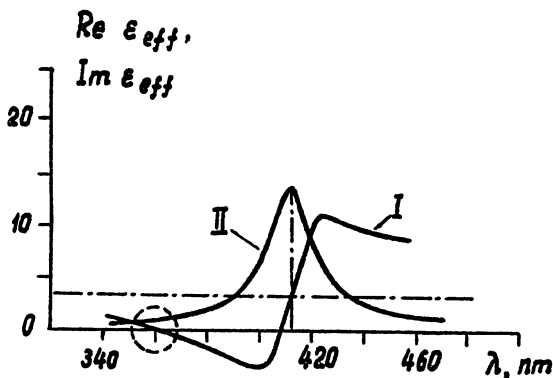


Рис. 1

Анализ выра-

жений (2), (3) (см. также рис.1) показывает, что при относительно большом значении фактора заполнения

$$\rho > \rho_c \approx \frac{2\epsilon_2}{9\epsilon_n - 6\epsilon_2} \quad (5)$$

существует область частот, в которой значения как  $Re(\epsilon_{eff})$ , так и  $Im(\epsilon_{eff})$  близки к нулю.

Из теории плазменных пленок известно [10,11], что тонкий

$(2\pi d/\lambda_0 \ll 1)$  слой однородной плазмы с близкой к нулю диэлектрической проницаемостью:

$$0 < \operatorname{Re}(\varepsilon) \ll |\operatorname{Im}(\varepsilon)| \ll 1, \quad (6)$$

может практически полностью поглощать падающее на него  $p$ -поляризованное электромагнитное излучение. Данный эффект резонансного поглощения обусловлен синхронизованным возбуждением внутри слоя квазистатической (дипольной) моды [11]. Поскольку значение эффективной диэлектрической проницаемости дисперсной среды может удовлетворять условию (6), то можно ожидать, что возбуждение соответствующей квазистатической моды внутри тонкой дисперсной пленки  $p$ -поляризованным светом является причиной аномального поглощения падающей энергии. Наличие критического значения  $\rho$  (см. (5)) означает, что такой эффект поглощения (если он имеет место) является коллективным или многочастичным в отличие от привычного одночастичного эффекта, наблюдаемого и в  $s$ - и  $p$ -поляризованном свете.

3. Итак, пусть имеется плоский слой диспергированного вещества толщины  $d$ , граничащий с обеих сторон со средой с  $\varepsilon_0=1$ . Коэффициенты поглощения плоской электромагнитной волны таким слоем соответственно для  $s$ - и  $p$ -поляризации имеют вид:

$$q_s = 1 - \left| \frac{(\cos^2 \theta_0 - n_z^2) \sin(k_0 d n_z)}{(n_z^2 + \cos^2 \theta_0) \sin(k_0 d n_z) - 2i n_z \cos \theta_0 \cos(k_0 d n_z)} \right|^2 - \left| \frac{2n_z \cos \theta_0}{(n_z^2 + \cos^2 \theta_0) \sin(k_0 d n_z) - 2i n_z \cos \theta_0 \cos(k_0 d n_z)} \right|^2, \quad (7)$$

$$q_p = 1 - \left| \frac{(\epsilon_{\text{eff}}^2 \cos^2 \theta_0 - n_z^2) \sin(k_0 d n_z)}{(\epsilon_{\text{eff}}^2 \cos \theta_0 + n_z^2) \sin(k_0 d n_z) - 2i n_z \epsilon_{\text{eff}} \cos \theta_0 \cos(k_0 d n_z)} \right|^2 -$$

$$- \left| \frac{2n_z \epsilon_{\text{eff}} \cos \theta_0}{(\epsilon_{\text{eff}}^2 \cos \theta_0 + n_z^2) \sin(k_0 d n_z) - 2i n_z \epsilon_{\text{eff}} \cos \theta_0 \cos(k_0 d n_z)} \right|^2, \quad (8)$$

где  $n_z = (\epsilon_{\text{eff}} - \sin^2 \theta_0)^{1/2}$ ,  $\theta_0$  - угол падения волны,  $k_0 = 2\pi/\lambda_0$ . В случае тонкого слоя в окрестности интересующей нас резонансной точки  $\text{Re}(\epsilon_{\text{eff}}) \approx 0$ ,  $\text{Im}(\epsilon_{\text{eff}}) \ll 1$  формулы (7) и (8) упрощаются к виду:

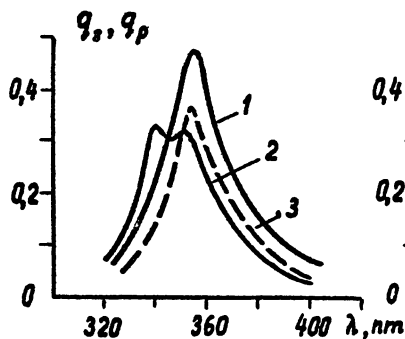
$$q_p \approx \frac{2\mu \text{Im}(\epsilon_{\text{eff}})}{(\mu + \text{Im}(\epsilon_{\text{eff}}))^2}, \quad q_n \approx \text{Im}(\epsilon_{\text{eff}}) (k_0 d) \ll 1, \quad (9)$$

где  $\mu = \sin^2 \theta_0 (k_0 d) / \cos \theta_0$ .

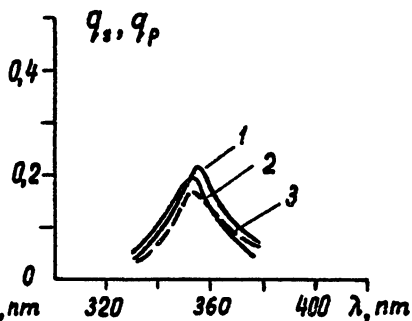
Как видно из (9), сильное поглощение может наблюдаться только для  $p$ -поляризованных волн (исключая, естественно, случай нормального падения:  $q_p \rightarrow 0$ , если  $\theta_0 \rightarrow 0$ ); максимально достижимое значение  $q_p$  равно, очевидно,  $1/2$ .

По формулам (7), (8) рассчитаны зависимости  $q_{p,n}(\lambda_0)$  в слоях с различной концентрацией серебряных частиц и различными значениями  $\epsilon_n$ . Радиус частиц предполагался порядка  $5 + 10 \text{ нм}$ , толщина слоя  $k_0 d = 0.2$ . Результаты расчетов представлены на рис. 2 для  $\epsilon_n = 1$  и на рис. 3 для  $\epsilon_n = 2.2$  (стекло). Там же изображены зависимости  $\text{Re}(\epsilon_{\text{eff}}(\lambda_0))$  и  $\text{Im}(\epsilon_{\text{eff}}(\lambda_0))$ . Рис. 2а, б и рис. 3с, д отвечают  $\rho = \rho_c$ , рис. 2с, д отвечают  $\rho < \rho_c$  и, наконец, рис. 3а, б отвечают  $\rho > \rho_c$ . Пороговое значение фактора заполнения  $\rho_c$  понижается с увеличением  $\epsilon_n$  в соответствии с соотношением (5) и равно  $\rho_c \approx 0.16$

a)

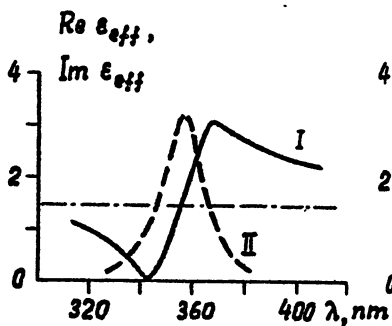
 $\rho=0.16$ 

c)

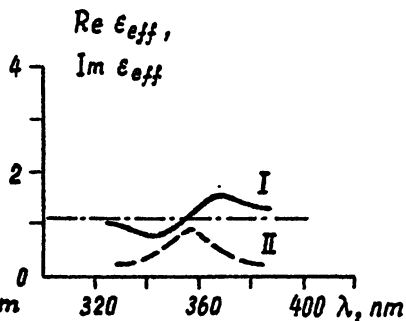
 $\rho=0.05$ 

1 - s-поляризация, 2 - p-поляризация, 3 - нормальное падение

b)

 $\rho=0.16$ 

d)

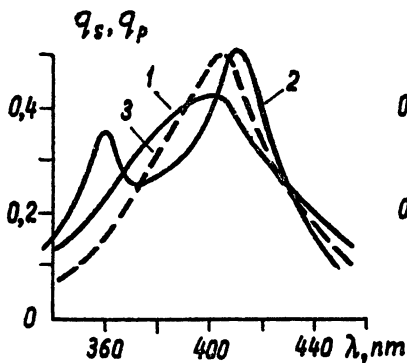
 $\rho=0.05$ 

I -  $\text{Re} \epsilon_{\text{eff}}$ , II -  $\text{Im} \epsilon_{\text{eff}}$

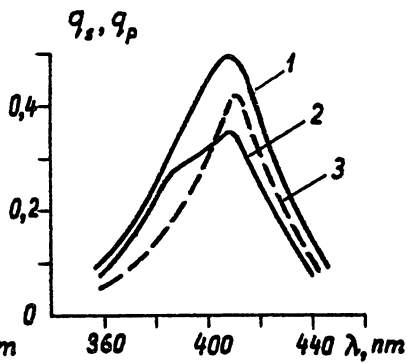
Рис. 2



a)

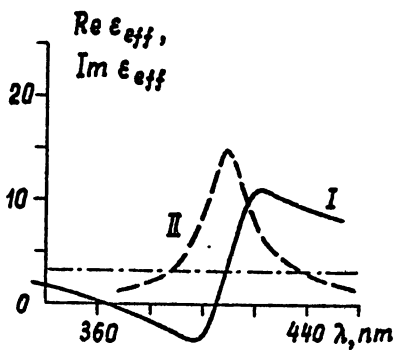
 $\rho=0.16$ 

c)

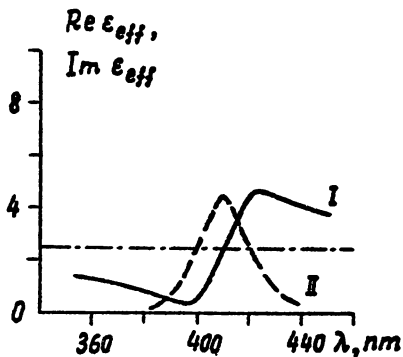
 $\rho=0.05$ 

1 - s-поляризация, 2 - p-поляризация, 3 - нормальное падение

b)

 $\rho=0.16$ 

d)

 $\rho=0.05$ 

I -  $Re \epsilon_{eff}$ , II -  $Im \epsilon_{eff}$

Рис. 3

при  $\epsilon_n = 1$  и  $\rho_c \approx 0.05$  при  $\epsilon_n = 2.2$ .

Расчитанные кривые наглядно демонстрируют, что в спектре поглощения  $p$ -поляризованного света тонкой дисперсной пленки, состоящей из сферических частиц, при  $\rho > \rho_c$  присутствуют две линии поглощения (рис. 3а, б). Длинноволновая линия наблюдается также при нормально падающем свете и при наклонно падающем  $s$ -поляризованном свете. Частота данной линии определяется условием  $\epsilon_1 \approx -2\epsilon_n$ . Согласно теории МГ причиной сильного поглощения света является возбуждение дипольного резонанса сферических частиц, сопровождающегося резонансным возрастанием поля внутри каждой отдельной частицы.

Другая (более коротковолновая) линия наблюдается только для  $p$ -поляризованного света при  $\rho > \rho_c$  на частоте, где  $\text{Re}(\epsilon_{\text{eff}}) \approx 0$ ,  $\text{Im}(\epsilon_{\text{eff}}) \ll 1$ . С уменьшением  $\rho$  эта линия смещается в сторону более длинных волн и исчезает при сравнительно малом значении фактора заполнения. Как нетрудно убедиться, при падении  $p$ -поляризованной волны на тонкую дисперсную пленку с  $\epsilon_{\text{eff}} \approx 0$  нормальная (к поверхности пленки) компонента средней напряженности электрического поля внутри пленки  $\langle E_n \rangle$  (практически однородная) существенно возрастает по сравнению со значением  $E_n^{\text{inc}}$  в падающей волне ( $\langle E_n \rangle / E_n^{\text{inc}} \approx 1/\epsilon_{\text{eff}} \gg 1$ ), что, в конечном счете, и обеспечивает аномально сильное поглощение. В целом данный эффект аномального поглощения обусловлен резонансным (синхронизованным) возбуждением квазистатической моды с резко выраженной нормальной компонентой среднего электрического поля.

В заключение отметим, что отклонение формы частиц от сферической ведет к анизотропии дисперсной среды, следствием которой может быть появление новых линий в спектрах поглощения света.

Так, эллипсоидальные частицы характеризуются тремя частотами дипольного резонанса, что может быть причиной появления дополнительных линий поглощения как в  $s$ - так и в  $p$ -поляризованном излучении в зависимости от ориентации частиц относительно поверхности пленки. Кроме того, если ось анизотропии пленки направлена не по нормали, то волна  $s$ -поляризации может возбудить описанную выше квазистатическую моду в пленке, что приводит к появлению пика поглощения света.

### Л и т е р а т у р а

1. Yamaguchi S. *The Optical Absorption of Heat Treated Very Thin Silver Films and Its Dependence on the Angle of Incidence* // J. Phys. Soc. Japan. 1962, v.17, p.1172
2. Emeric N. and Emeric A. // *Thin Solid Films*. 1967, v.1, p.13
3. Kennerly W., Little J.W., Warmach R.J., Ferrell T.L. *Optical Properties of Heated Ag Films* // Phys. Rev. B., 1984, v.29, p.2926
4. Yamaguchi T., Yoshida S., Kinbata A. *Determination of the Inter-Island Dielectric Constant in Aggregated Silver Films by Measurement of Optical Plasma Resonance Absorption* // J. Opt. Soc. Am., 1972, v.62, p.634
5. Genzel L., Martin T.P. *Infrared Absorption in Small Ionic Crystals* // Surf. Sci., 1973, v.34, p.33; Phys. Stat. Sol. (b), 1972, v.51, p.94
6. Maxwell-Garnett J.C. // *Philos. Trans. R. Soc. Lond.*, 1904, v.203, p.385; 1906, v.205, p.237

7. Huebner R.H., Arakawa E.T., McRae R.A., Hamm R.N. *Optical Constants of Vacuum-Evaporated Silver Films* // *J. Opt. Soc. Am.*, 1964, v.54, p.1434
8. Otter M. *Optische Konstanten Massiver Metalle* // *Z. Phys.*, 1961, b.161, s.163
9. Kreibitz H., Fragstein C.V. *The Limitation of Electron Mean Free Path in Small Silver Particles* // *Z. Phys.*, 1969, b.224, s.307
10. Godwin R.P. *Optical Mechanism for Absorption of Laser Energy Incident on Solid Targets* // *Phys. Rev. Lett.*, 1973, v.28, p.85
11. Котов А.К. *О поглощающих свойствах тонких плазменных пленок* // *Физика плазмы*, 1985, т. 11, с. 636

Дата поступления статьи  
17 октября 1991 г.