

РАСЧЕТ ОПТИЧЕСКИХ СВОЙСТВ ГЕТЕРОГЕННЫХ ПЛЕНОК, СОДЕРЖАЩИХ МЕТАЛЛИЧЕСКИЕ НАНОЧАСТИЦЫ

А.В.Леонтьев, О.В.Минченкова

Белгосуниверситет, Минск

1. Введение.

В настоящее время огромный интерес исследователей во всем мире привлекают гетерогенные среды, состоящие из ансамбля металлических или полупроводниковых наночастиц, находящихся в оптически прозрачной диэлектрической матрице [1-4]. Методы получения таких структур, включая, ионную имплантацию, химическое легирование и другие комплексные методики интенсивно разрабатываются в ведущих научных центрах. Как показано ранее [2, 3], такие среды могут иметь аномально высокий коэффициент преломления, значительно превосходящий достижимые в настоящее время значения, что позволит создать микроминиатюрные лазеры, нелинейные преобразователи частоты излучения и ряд других устройств. Обнаружено также [5-7], что такие системы весьма перспективны для разработки нового поколения устройств интегральной оптики и оптоэлектроники, так как для них характерен нелинейный отклик на воздействие фемтосекундного лазера.

Целью данной работы являлась создание программного обеспечения для моделирования оптических свойств гетерогенных сред, состоящих из диэлектрической матрицы и металлических или полупроводниковых наночастиц. Для решения поставленной задачи разработано программное обеспечение на основе подходов Максвелл-Гарнетта, Клаузиуса-Моссотти и теории Ми, а также составлена база данных оптических параметров широкого круга материалов микроэлектроники.

2. Методика проведения расчетов.

Для проведения расчетов оптических функций гетерогенных сред на языке Matlab написана программа, которая рассчитывает диэлектрическую функцию смеси, показатели преломления и поглощения по формулам Максвелл-Гарнетта и Клаузиуса-Моссотти, а также сечения экстинкции, отражения и поглощения по теории Ми [8]. В программе имеется база данных (БД), содержащая оптические функции $n(\lambda)$ и $k(\lambda)$ основных оптических и полупроводниковых материалов (оптическое стекло, синтетический сапфир, фоторезисты, Si_3N_4 , GaAs и др.), используемых в микроэлектронике. Также БД содержит информацию по оптическим функциям ряда практически важных металлов (Au, Ag, Cu, Mo и др.) и сплавов. Интерфейс программы (рис.1)

дает возможность выбора диэлектрической матрицы, сорта, радиуса, удельного объема и флуктуационного параметра наночастиц, концентрацию собственных атомов матрицы.



Рис. 1. Интерфейс программы “Nanoparticle”

Для создания базы данных использовались диэлектрические функции, взятые из [9,10]. Рассмотренный алгоритм допускает сферическую и эллиптическую форму наночастиц, последняя характерна для некоторых переходных металлов.

Диэлектрическая функция наночастиц серебра в оптическом стекле достаточно широко исследована в ряде работ [4, 5]. Поэтому в настоящей работе приводятся результаты моделирования оптических свойств гетерогенной среды на основе матриц сапфира и оптического стекла, содержащих атомы золота и меди.

2.1 Расчет диэлектрических функций смеси по методам Клаузиуса-Моссотти и Максвелл-Гарнетта.

Соотношение Клаузиуса-Моссотти для наночастиц имеет вид [2]:

$$\frac{\varepsilon_{mix} - 1}{\varepsilon_{mix} + 2} = \frac{4\pi}{3} \sum_j \alpha_j(\lambda) N_j, \quad (1)$$

где $\alpha_j(\lambda)$ - поляризуемость частиц сорта j , составляющих смесь частиц и матрицы, а N_j - их концентрация.

Поскольку наночастицы имеют радиус, не превышающий несколько нанометров, то можно записать следующее выражение для поляризуемости наночастиц [2]:

$$\alpha_m = r_m^3 \frac{\varepsilon_m(\lambda) - 1}{\varepsilon_m(\lambda) + 2}, \quad (2)$$

где $\varepsilon_m(\lambda) = \varepsilon_m'(\lambda) + i\varepsilon_m''(\lambda)$ - диэлектрическая функция объемного материала, из которого изготовлены наночастицы. Тогда введя обозначение

$$\eta = \frac{4\pi}{3} r_m^3 N_m, \quad (3)$$

где η - удельный объем наночастиц, N_m - концентрация наночастиц, а объем матрицы составляет $(1-\eta)$ от общего объема смеси, то, как следует из (2), диэлектрическая проницаемость предложенной гетерогенной среды определяется следующим соотношением:

$$\frac{\varepsilon_{mix}(\lambda) - 1}{\varepsilon_{mix}(\lambda) + 2} = \eta \frac{\varepsilon_m(\lambda) - 1}{\varepsilon_m(\lambda) + 2} + (1 - \eta) \frac{\varepsilon_1(\lambda) - 1}{\varepsilon_1(\lambda) + 2}, \quad (4)$$

где $\varepsilon_1(\lambda)$ - диэлектрическая функция материала матрицы. Данное выражение представляет собой формулу Клаузиуса-Моссотти для матрицы, содержащей наночастицы одного типа.

Формула Клаузиуса-Моссотти является не единственной для такого рода расчетов, особенно, учитывая приближенное описание полей от частиц, окружающих сферу. Выражение Максвелл-Гарнетта является наиболее распространенной альтернативой вышеуказанной формуле для расчетов диэлектрической функции смеси. Для матрицы, содержащей один сорт наночастиц, выражение имеет вид [8]:

$$\frac{\varepsilon_{mix}(\lambda) - \varepsilon_1(\lambda)}{\varepsilon_{mix}(\lambda) + 2\varepsilon_1(\lambda)} = \eta \frac{\varepsilon_m(\lambda) - \varepsilon_1(\lambda)}{\varepsilon_m(\lambda) + 2\varepsilon_1(\lambda)}. \quad (5)$$

Несмотря на некоторое количественное различие результатов, эти формулы предсказывают качественно одинаковые эффекты и могут быть использованы при прогнозировании.

На рис. 1 и 2 представлены графики показателей преломления матрицы оптического стекла с наночастицами золота и сапфировой матрицы с атомами меди. Видно, что показатель преломления в матрице, содержащей медные частицы, выше на длине волны плазмонного резонанса, однако при выборе материала надо учесть, что коэффициент экстинкции c_{ext} медных частиц в сапфире (10^{-3} - 10^{-2}) на два порядка выше, чем тот же коэффициент для оптического стекла, содержащего золотые наночастицы (10^{-5} - 10^{-4}).

Также видно, что положение плазмонного резонанса на частотной оси и его значение, а, следовательно, величина показателей преломления и поглощения, различные в зависимости от сорта наночастиц.

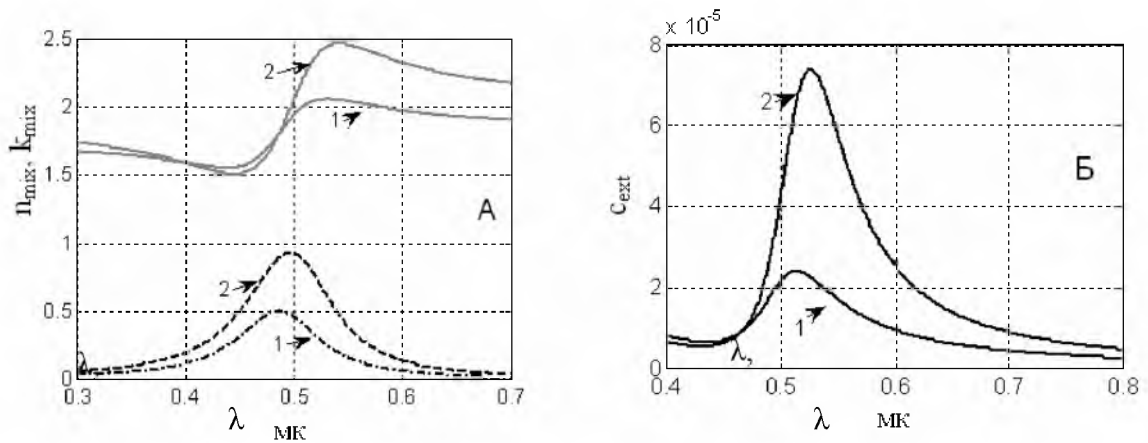


Рис. 2. Коэффициент преломления (А – сплошные линии), абсорбции (А – пунктирные линии) и экстинкции (Б) матрицы из оптического стекла, содержащего атомы Au, рассчитанные по формуле Клаузиуса-Моссотти для различных удельных объемов η : 1 - 0.15, 2 - 0.25

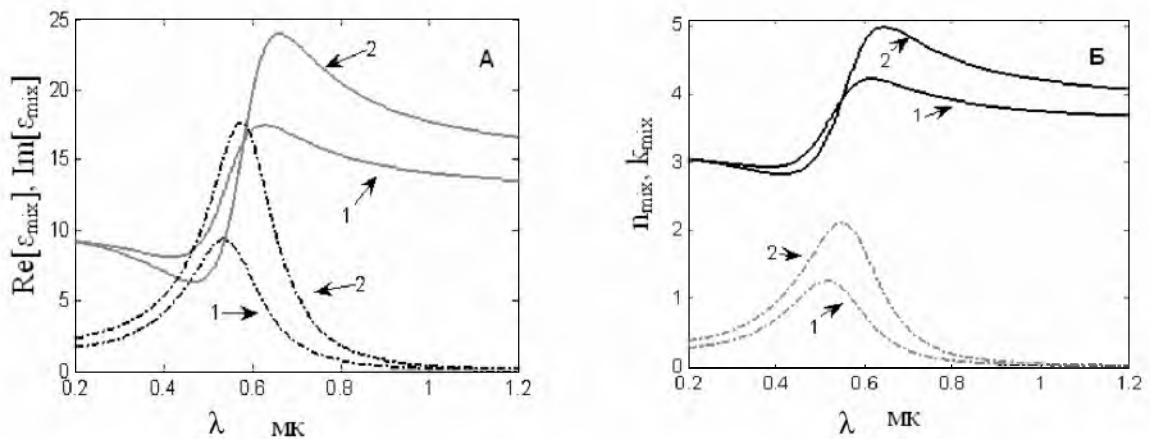


Рис. 3. А). Диэлектрические функции матрицы сапфира (сплошная линия – действительная часть, пунктирная – мнимая часть), содержащей атомы Si, рассчитанные по формуле Клаузиуса-Моссотти. Б). Показатель преломления (сплошная жирная линия) и абсорбции (пунктирная линия) для различных удельных объемов η : 1 - 0.25, 2 - 0.35.

2.2. Расчет сечений рассеяния, поглощения и экстинкции смеси по теории Ми.

Теория Ми представляет собой формальное решение уравнений Максвелла с соответствующими граничными условиями для задачи рассеяния электромагнитной волны на шаре произвольного размера. Поскольку полная выкладка теории Ми [11, 12] не входит в задачу этой

статьи, то приведем лишь основные конечные формулы, использованные непосредственно в расчете.

Сечения рассеяния Q_s , поглощения Q_a , экстинкции Q_e плоской ЭМ волны рассчитываются по выражениям:

$$Q_s = \frac{2}{x^2} \sum_{n=1}^{\infty} (2n+1)(|a_n|^2 + |b_n|^2), \quad Q_a = \frac{1}{x^2} \left| \sum_{n=1}^{\infty} (2n+1)(-1)^n (a_n - b_n) \right|^2, \\ Q_e = \frac{2}{x^2} \sum_{n=1}^{\infty} (2n+1)(a_n + b_n), \quad (6)$$

где коэффициенты a_n, b_n задаются следующими формулами:

$$a_n = \frac{\psi_n'(\tilde{m}x)\psi_n(x) - \tilde{m}\psi_n(\tilde{m}x)\psi_n'(x)}{\psi_n'(\tilde{m}x)\zeta_n(x) - \tilde{m}\psi_n(\tilde{m}x)\zeta_n'(x)}, \quad b_n = \frac{\tilde{m}\psi_n'(\tilde{m}x)\psi_n(x) - \psi_n(\tilde{m}x)\psi_n'(x)}{\tilde{m}\psi_n'(\tilde{m}x)\zeta_n(x) - \psi_n(\tilde{m}x)\zeta_n'(x)}, \quad (7)$$

функции Рикатти-Бесселя $\psi_n(x), \zeta_n(x)$ имеют вид:

$$\psi_n(x) = \left(\frac{\pi x}{2}\right)^{1/2} J_{n+1/2}(x); \quad \zeta_n(x) = \left(\frac{\pi x}{2}\right)^{1/2} H_{n+1/2}(x). \quad (8)$$

$J_{n+1/2}$ и $H_{n+1/2}$ – функции Бесселя первого и второго рода. Остальные параметры задаются как: $x = \frac{2\pi a}{\lambda}$, где a – радиус шара, λ – длина волны;

$\tilde{m} = \frac{1}{\sqrt{\varepsilon - \frac{4\pi i \sigma}{\omega}}}$ – параметр, обратный комплексному показателю

преломления среды.

На рис. 4 приведен пример зависимости сечения экстинкции от параметра $x = \frac{2\pi a}{\lambda}$ волны, падающей на сапфировую матрицу содержащую медные наночастицы. Видно, что с увеличением размера частицы сечение экстинкции тоже возрастает.

2.3. Учет термической обработки

При функционировании приборов на основе гетерогенных пленок, содержащих металлические наночастицы, нужно обязательно учитывать то, что изделие может достаточно сильно нагреваться.

Специфичность дисперсного состояния вещества проявляется в таких фундаментальных физических параметрах, как температура плавления (рис. 5): при повышении дисперсности металлических частиц температура плавления значительно снижается относительно температуры плавления массивного образца. Поэтому, нанокластеры,

состоящие из легкоплавких металлов или сплавов, могут быть в жидком состоянии.

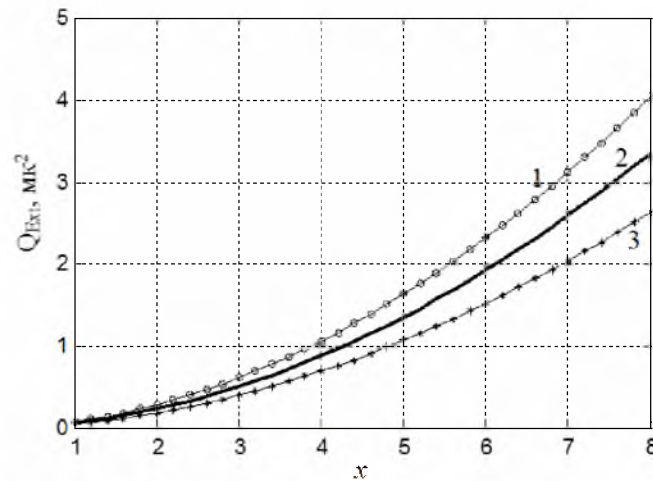


Рис. 4. Сечение экстинкции в сапфировой матрице с медными наночастицами в зависимости от параметра $x = 2\pi a/\lambda$: 1 - $\lambda = 0,48$ мкм, 2 - $\lambda = 0,54$ мкм, 3 - $\lambda = 0,60$ мкм

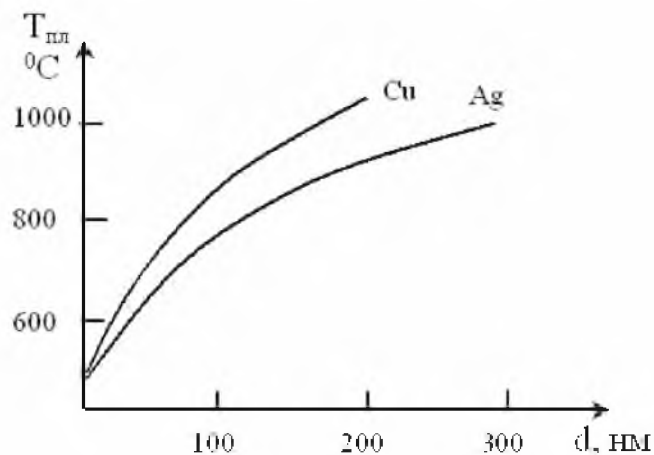


Рис. 5. Зависимость температуры плавления меди и серебра от размера частиц

3. Выводы

Разработано программное обеспечение, позволяющее прогнозировать оптические свойства гетерогенных пленок на основе металлических наночастиц, взвешенных в диэлектрических матрицах. Оптические материалы, представленные в расчете, могут применяться для создания функциональных устройств, управляющих параметрами электромагнитного излучения. Типичная среда состоит из диэлектрической матрицы, содержащей частицы размером меньшим длины волны падающего

излучения. Подбирая определенную комбинацию “матрица-наночастица” можно управлять положением резонанса коэффициента преломления.

Авторы благодарят фонд фундаментальных исследований РБ за частичную финансовую поддержку данных исследований (проект Т07-239).

1. *Займидорога О.А., Самойлов В.Н.* Проблема получения высокого показателя преломления и оптические свойства гетерогенных сред // Физика элементарных частиц и атомного ядра – 2002 – том 33 – вып.1 – с.101-157.
2. *Ораевский А.Н., Проценко И.Е.* Высокий показатель преломления и другие особенности оптических свойств гетерогенных сред // Письма в ЖЭТФ. – 2000 – том 72 – вып.9 – с.641-646.
3. *Ораевский А.Н., Проценко И.Е.* Оптические свойства гетерогенных сред // Квантовая электроника – 2001 – том 31 – вып.3 – с.252-256.
4. *Степанов А.Л.* Синтез наночастиц меди в сапфире методом ионной имплантации // Письма в ЖЭТФ. – 2002 – том 28 – вып.20 – с.58-65.
5. *N. Kishimoto, Y. Takeda, N. Umeda, N. Okubo, R.G. Faulkner*/Ion-induced metal nanoparticles in insulators for nonlinear optical property//Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B 206 (2003) 634–638.
6. *Y. Takeda, N. Kishimoto*/ Nonlinear optical properties of metal nanoparticle composites for optical applications// Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B 206 (2003) 620–623.
7. *Степанов А.Л.* и др. Нелинейно-оптические свойства наночастиц золота, синтезированных в сапфире ионной имплантацией // Письма в ЖЭТФ. – 2005 – том 31 – вып.16 – с.59-66.
8. *Петров Ю.И.* Физика малых частиц // М.: Наука, 1982. С.359.
9. *Boyd G.T., Rasing Th., Liete J.R.R., Shen I.R.* Local field enhancement on rough surfaces of metals, semimetals, and semiconductors with the use of optical second-harmonic generation // Physical Review – 1984 – vol. 30 – num. 2 – p.519-526.
10. *Michael Bass* etc. Handbook of optics // McGraw Hill Inn, 1995, p.1187-1226
11. *Г. Ван де Хюлст.* Расеяние света малыми частицами // М.:Изд-во иностр. лит-ры, 1961.
12. *Bohren C.F., Huffman D.R.* Absorption and scattering of light by small particles //Wiley Science, 1983.