

**ГОСУДАРСТВЕННОЕ НАУЧНОЕ УЧРЕЖДЕНИЕ  
«ИНСТИТУТ ФИЗИКИ ИМ. Б.И. СТЕПАНОВА  
НАЦИОНАЛЬНОЙ АКАДЕМИИ НАУК БЕЛАРУСИ»**

**УДК 535.343; 539.184; 541.1**

**КАЧАН  
Светлана Михайловна**

**ВЛИЯНИЕ КОГЕРЕНТНЫХ РЕЗОНАНСНЫХ  
ВЗАИМОДЕЙСТВИЙ НА ОПТИЧЕСКИЕ СВОЙСТВА  
МЕТАЛЛ-ДИЭЛЕКТРИЧЕСКИХ НАНОСТРУКТУР**

**Автореферат  
диссертации на соискание ученой степени  
кандидата физико-математических наук  
по специальности 01.04.05 – оптика**

**Минск, 2007**

Работа выполнена в государственном научном учреждении «Институт физики им. Б. И. Степанова Национальной Академии Наук Беларуси»

Научный руководитель – Понявина Алина Николаевна,  
доктор физико-математических наук,  
ведущий научный сотрудник  
лаборатории физики инфракрасных лучей  
ГНУ «Институт физики им. Б.И. Степанова  
НАН Беларуси»

Официальные оппоненты: Лойко Валерий Александрович,  
доктор физико-математических наук,  
профессор, главный научный сотрудник  
лаборатории оптики рассеивающих сред  
ГНУ «Институт физики им. Б.И. Степанова  
НАН Беларуси»

Кузьмин Владимир Николаевич,  
кандидат физико-математических наук,  
заместитель директора по научной работе  
ГНУ «Республиканский научно-технический  
центр дистанционной диагностики природной  
среды «ЭКОМИР»

Оппонирующая организация – Гродненский государственный университет  
им. Янки Купалы

Защита состоится “ 4 ” марта 2008 г. в 14.30 на заседании совета по  
защите диссертаций Д 01.01.01 при Государственном научном учреждении  
«Институте физики им. Б.И. Степанова Национальной академии наук  
Беларуси» (просп. Независимости 68, г. Минск, 220072, Республика Беларусь,  
lum@imaph.bas-net.by, ifanbel@ifanbel.bas-net.by, тел. 345-33-54)

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке Государственного научного  
учреждения «Институт физики им. Б.И. Степанова Национальной академии  
наук Беларуси»

Автореферат разослан “ 1 ” февраля 2008 г.

Ученый секретарь  
Совета по защите диссертаций,  
доктор физ.-мат. наук



Кузьмицкий В.А

Последние годы были отмечены огромным успехом в создании различного рода металл-диэлектрических наноструктурированных материалов, нашедших свое применение в самых разных областях науки и техники, включая и оптику. Уже обнаружен ряд уникальных свойств таких наноструктур, что делает их эффективными материалами для разработки новых высокоэффективных сенсоров, эмиттеров, детекторов и преобразователей, а также для других применений в сверхбыстрой передаче и оптическом хранении данных.

Строго говоря, металлические наноструктуры с нетривиальными оптическими свойствами издавна использовались в оптике. В качестве примеров можно указать на коллоидные взвеси частиц благородных металлов с размерами в несколько нанометров, которые еще с античных времен используются для создания цветных стёкол.

Необычные линейные оптические свойства наночастиц благородных металлов, существенно отличающиеся как от характеристик массивных образцов, так и от характеристик отдельных атомов, связаны с коллективными колебаниями электронов проводимости вблизи поверхности частицы под действием светового излучения. Возникающие в наноразмерных металлических частицах локализованные плазмонные резонансы приводят к формированию интенсивных полос поглощения в видимом диапазоне излучения.

Нелинейные оптические свойства наночастиц также представляют значительный интерес. Сильное увеличение локального поля на частотах, близких к частоте плазмонного резонанса, вызывает резкий рост параметров нелинейности наночастицы по сравнению с объемным металлом. В частности, среди лазерно-индуцированных нелинейных оптических явлений с участием поверхностных плазмонов важное место занимает "гигантское" комбинационное рассеяние молекулами, адсорбированными на поверхности металлических наночастиц.

Характеристики поверхностного плазмонного возбуждения, и в первую очередь его частота и время жизни, зависят от материала частицы, ее геометрии (форма, размер, внутренняя структура), окружающей среды и температуры. Наиболее изучены к настоящему моменту свойства однородных металлических наносфер, тогда как влияние внутренней неоднородности, например, наличие в составе частицы диэлектрического ядра, требует дополнительного исследования.

Многие специфические черты металл-диэлектрических наноструктур связаны не только с особенностями характеристик отдельных наночастиц, но и с их коллективными резонансными взаимодействиями в системе. При определенных условиях в процессе изготовления наноструктур могут возникать кластеры из наночастиц, в случае увеличения их концентрации может образоваться фрактальная структура, а при достаточно плотной упаковке возникает ближний порядок в расположении частиц. С появлением

пространственной упорядоченности частиц возникает новый характерный корреляционный масштаб, а стратификация такой среды или ориентационная упорядоченность частиц обуславливает появление выделенных направлений. Все это приводит к качественному изменению спектров резонансных взаимодействий, чувствительных как к изменению симметрии, так и к изменению пространственных корреляционных масштабов.

Новейшие достижения в области нанотехнологий позволяют создавать наноматериалы с разнообразной контролируемой архитектурой. Однако важным фактором, ограничивающим широкое применение нетривиальных оптических металл-диэлектрических наноструктур является сложность и, соответственно, высокая стоимость их изготовления. Поэтому ведется активный поиск таких наноматериалов, которые одновременно обладали бы новыми полезными оптическими свойствами и притом были бы достаточно просты и дешевы в изготовлении. Среди подобных наноструктур важное место занимают самоорганизованные планарные системы, которые могут быть сформированы на твердых подложках с использованием технологий специфической адсорбции или самосборки из металлических частиц в упорядоченные, либо частично-упорядоченные наноструктуры.

Однако, несмотря на относительную доступность и разнообразие методов изготовления самоорганизованных наноструктур, систематическое изучение их оптических свойств до настоящего момента отсутствовало. В значительной степени это определяется трудностями моделирования оптического отклика ансамблей близкорасположенных и пространственно частично-упорядоченных наночастиц. Для таких систем необходим учет сильного межчастичного электродинамического взаимодействия, связанного с когерентным рассеянием и многократным перерассеянием света в частично-упорядоченной многочастичной системе.

Недостаточно исследованным остается и вопрос о характере резонансных электромагнитных взаимодействий в трехмерных металл-диэлектрических наноматериалах на основе самоорганизованных планарных систем, в которых последовательное чередование монослоев наночастиц с диэлектрическими пленками субволновой толщины приводит к одновременной реализацией фотонного и электронного ограничения.

Изучению влияния когерентных резонансных взаимодействий на линейные оптические свойства двумерных и трехмерных частично-упорядоченных планарных металл-диэлектрических наноструктур, а также анализу резонансного взаимодействия света с составляющими их отдельными металлосодержащими наночастицами, посвящена данная диссертация.

## ОБЩАЯ ХАРАКТЕРИСТИКА РАБОТЫ

### **Связь работы с крупными научными программами (проектами) и темами**

Основные результаты, положенные в основу настоящей диссертационной работы, были получены при выполнении Государственных программ фундаментальных и ориентированных фундаментальных исследований в рамках тем «Исследование влияния структурной организации ансамблей наноразмерных частиц на их оптические свойства» (1996-2000 гг., № госрегистрации 19963281), «Коллективные взаимодействия и оптические свойства металл-диэлектрических структурно-организованных нанокомпозитов» (2001-2005 гг., № госрегистрации 20014293), «Исследование новых светоизлучающих наноструктур на основе фотонных кристаллов и нанопористого стекла, активированного лантаноидами, наночастицами и биомолекулами» (2003-2005 гг., № госрегистрации 20033770), «Разработка моделей и методов исследования планарных металлодиэлектрических самоорганизующихся наноструктур для целей их оптической диагностики» (2006-2010 гг., № госрегистрации 20067040).

Работа также получила поддержку Белорусского Республиканского Фонда фундаментальных исследований (БРФФИ) в рамках тем Ф97-327 «Коллективные размерные эффекты в пространственно-упорядоченных ультрадисперсных структурах» (1997-2000 гг.), Х99М-121 «Исследование размерных эффектов и оптических характеристик биметаллических наноструктур, формируемых при окислительно-восстановительных процессах в водной среде» (1999-2002 гг.), Ф00-121 «Резонансные взаимодействия и поверхностные моды в наноструктурах с трансляционной симметрией» (2000-2003 гг.), Ф06Р-184 «Исследование оптических свойств нанокластерных и нанопористых плазмонных структур» (2006-2008 гг.).

Кроме того, работа поддерживалась Международным научно-техническим центром (МНТЦ) в рамках проектов № В-678 «Комплексное исследование взаимодействия низкоинтенсивного оптического излучения с асферическими металлическими наночастицами и их планарными структурами различного характера упорядочения» (2002-2005 гг.) и № В-276-2 «Мезоскопические источники, переключатели и преобразователи оптического излучения» (2000-2006 гг.), а также Международной ассоциацией INTAS в рамках проекта № 01-6142 «Перестраиваемые композитные фотонные кристаллы» (2000-2002 гг.).

Тема диссертационной работы соответствует приоритетному направлению «Оптическое и электронное приборостроение» научно-технической деятельности в Республике Беларусь на 2006-2010 годы, утвержденному указом Президента Республики Беларусь № 315 от 6 июля 2005 г.

## **Цель и задачи исследования**

Объектом настоящего исследования являются металлосодержащие наночастицы и их частично-упорядоченные планарные и многослойные системы, перспективные с точки зрения их использования в оптике и оптоэлектронике. Цель настоящей работы – установить закономерности взаимодействия электромагнитных волн с частично-упорядоченными системами металлических наносфер и двухслойными металлосодержащими наночастицами в диапазоне частот поверхностного плазмонного резонанса, а также найти связь между указанными закономерностями и геометрическими параметрами наноструктур. Для достижения поставленной цели потребовалось решить ряд задач:

1. Моделирование и выявление особенностей размерной зависимости оптических постоянных сферических металлических наноболочек.
2. Изучение с учетом размерных эффектов закономерностей резонансного взаимодействия света с изолированными металлосодержащими наночастицами однородной и двухслойной структуры.
3. Установление основных механизмов делокализации плазмонных возбуждений и формирования полос коллективных поверхностных плазмонных резонансов в спектрах плотноупакованных частично-упорядоченных монослоев металлических наночастиц.
4. Анализ резонансных эффектов, связанных с одновременной реализацией электронного и фотонного ограничения в многослойных металл-диэлектрических нанокompозитах с субволновой периодичностью, а также определение перспектив их практического применения.

## **Основные положения диссертации, выносимые на защиту**

1. Модель, учитывающая дополнительное затухание плазмонных возбуждений в сферической металлической наноболочке за счет рассеяния электронов проводимости на ее границах, позволяет получить зависимость диэлектрической проницаемости металлической наноболочки от ее геометрических параметров и корректно оценивать обусловленные указанной зависимостью эффекты уширения и спектрального сдвига полосы плазмонного ослабления света.
2. Когерентные электродинамические взаимодействия в частично-упорядоченном плотноупакованном монослое металлических наночастиц формируют локализованный в пределах области ближней упорядоченности коллективный плазмонный резонанс, высокочувствительный к изменению диэлектрической проницаемости окружающей среды.

3. Конкуренция процессов радиационного и нерадиационного распада коллективного плазмона в частично-упорядоченном плотноупакованном монослое металлических наночастиц приводит к немонотонному изменению резонансной, частотно-зависимой поглотательной способности монослоя от концентрации и размера наночастиц, что позволяет определить параметры монослоя, максимально поглощающего на заданной частоте.

4. Градиент по размеру и концентрации металлических наночастиц в многослойной системе на базе плотноупакованных монослоев металлических наночастиц, разделенных четвертьволновыми диэлектрическими промежуточными слоями, обеспечивает усиление поглощения в диапазоне частот поверхностного плазмонного резонанса и позволяет получить практически полное широкополосное поглощение уже в двухмонослойных покрытиях наноразмерной толщины.

### **Личный вклад соискателя**

Диссертационная работа отражает личный вклад автора в проведенные исследования. Основные результаты получены автором лично. Постановка задач и интерпретация полученных результатов осуществлялась совместно с научным руководителем, доктором физ.-мат. наук А.Н. Понявиной. Численное и аналитическое исследование спектральных свойств металл-диэлектрических наноструктур, проведение и обработка результатов вычислительных экспериментов, а также разработка программного обеспечения для них в среде «MATLAB» выполнены непосредственно соискателем. При выполнении работ в соавторстве с Н.И.Сильвановичем использовались его версии программы для расчета оптических свойств плотноупакованных монослоев. В работах, выполненных совместно с А.Д.Замковцом, А.Я.Хайруллиной, Г.П.Шевченко и О.Штенцелем, соавторами осуществлялся синтез наноструктурированных образцов и экспериментальное исследование их оптических характеристик. Две работы выполнены автором самостоятельно.

### **Апробация результатов диссертации**

Материалы, вошедшие в диссертационную работу, прошли апробацию на 20-ти конференциях, в том числе 19-ти международных – Международной конференции «Nanomeeting-1999» (г. Минск, 1999 г.), IV-ой Международной конференции «Лазерная физика и спектроскопия» (г. Гродно, 1999 г.), Международной конференции для молодых ученых и специалистов «Оптика-99» (г. Санкт-Петербург, 1999 г.), семинаре «Наноструктурированные материалы

2000: Беларусь-Россия» (г. Минск 2000 г.), XXV-ом Европейском конгрессе по молекулярной спектроскопии (г. Коимбра, 2000 г.), Международной конференции по лазерам и электрооптике (г. Ницца, 2000 г.), III-ей Международной конференции «Physics and Plasma Technology PPPT-3» (г. Минск, 2000 г.), Международной конференции «Nanomeeting-2001» (г. Минск, 2001 г.), Международном семинаре «Coherent Optics of Ordered and Random Media II» и летней научно-исследовательской школе «Saratov Fall Meeting'2001» (г. Саратов, 2001 г.); Международном оптическом конгрессе «Optics-XXI» и конференции «Fundamental problems of Optics» (г. Санкт-Петербург, 2002 г.), Международной конференции по физике и технологиям тонких пленок (г. Ивано-Франковск, 2003 г.), Международной конференции «Nanomeeting-2003» (г. Минск, 2003 г.), IV-ой Международной конференции «Plasma Physics and Plasma Technology PPPT-4» (г. Минск, 2003 г.), Международной конференции NATO Advanced Study Institute on «Photopolarimetry in Remote Sensing» (г. Ялта, 2003 г.), Международной научно-прикладной конференции «Nanocomposites 2004» (г. Сочи, 2004 г.), Международной конференции «ICONO/LAT-2005» (г. Санкт-Петербург, 2005 г.), Международном симпозиуме «Photonic and Electromagnetic Crystal Structures» PECS-VI (г. Агия Пелагия, 2005 г.); VI-ой Международной конференции по лазерной физике и оптическим технологиям, (г. Гродно, 2006 г.), Международной конференции «Nanomeeting-2007» (г. Минск, 2007 г.), Международной конференции «ICONO/LAT-2007» (г. Минск, 2007 г.).

### **Опубликованность результатов диссертации**

Список опубликованных работ по теме диссертации включает 34 наименования, в том числе 9 статей в рецензируемых научных журналах [1 – 9], 15 статей в сборниках трудов [10 – 24] и 10 тезисов докладов на конференциях [25 – 34]. В совокупности опубликованные материалы занимают 6.5 авторских листов.

### **Структура и объем диссертации**

Диссертация включает в себя введение, общую характеристику работы, четыре основные главы, заключение, библиографический список и приложения. Общий объем диссертации составляет 163 страницы, 48 из которых заняты 2 таблицами, 55 иллюстрациями и двумя приложениями, а 17 — списком из 233 использованных библиографических источников, включая 34 публикации соискателя.



## ОСНОВНОЕ СОДЕРЖАНИЕ РАБОТЫ

В первой главе выполнен аналитический обзор литературы по теме диссертации, с описанием объектов исследования и используемых при проведении исследования методов. В разделе 1.1 анализируется современное состояние экспериментальных и теоретических исследований основных линейных оптических свойств металл-диэлектрических наноматериалов, представляющих собой коллоидные или пространственно упорядоченные ансамбли сферических металлосодержащих наночастиц. В разделе 1.2 дан обзор методов теоретического исследования таких наноструктур, основанных на использовании разложения электромагнитных полей по векторным сферическим гармоникам. Большое внимание уделено расширению применимости таких методов на случай ансамблей наночастиц – как для многочастичных кластеров с произвольно заданным пространственным расположением наночастиц, так и для систем с периодическим либо частичным их упорядочением.

Во второй главе мы исследуем особенности спектрального проявления поверхностного плазмонного резонанса на металлосодержащих частицах с двухслойной структурой с учетом влияния размерных эффектов [1,2,5,6,10-13,18,19,25,26,29]. В разделе 2.1, в электростатическом приближении проводится качественный анализ спектрального поведения внешнего и внутреннего плазмонов металлической нанооболочки с изменением объемной доли  $f$  металла в частице [1]. Показано, что характер локализации плазмонов зависит от соотношения показателей преломления диэлектрических ядра  $n_c$  и матрицы  $n_m$ . При  $n_c < 2n_m$  внешний плазмон является низкочастотным, а внутренний – высокочастотным, в то время как при  $n_c > 2n_m$  происходит инверсия взаимного спектрального положения этих плазмонов. Для любых соотношений  $n_c$  и  $n_m$  при уменьшении  $f$  частота высокочастотного плазмона всегда увеличивается, а низкочастотного – уменьшается.

Корректное количественное описание спектральных характеристик плазмонов в металлической нанооболочке с помощью расширенной теории Ми требует учета размерной зависимости диэлектрической проницаемости металла, определяемой вкладом свободных электронов

$$\varepsilon(\omega) = 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2 + i\gamma_0\omega},$$

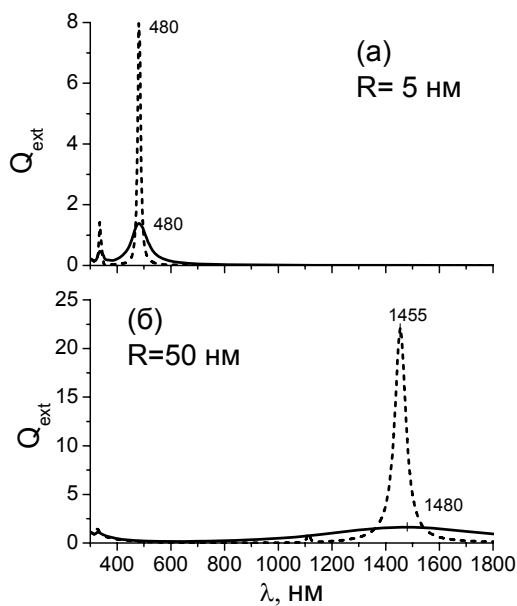
где  $\omega_p$  – плазменная частота объемного металла, а  $\gamma_0$  – постоянная затухания, определяемая средней частотой рассеяния свободных электронов на фонах, электронах и примесях в массивном образце. В рамках общепринятой модели Крейбига размерная зависимость появляется вследствие дополнительных столкновений электронов с поверхностью, ограничивающей металл, что уменьшает длину свободного пробега электронов и увеличивает постоянную

затухания,  $\gamma = \gamma_0 + Av_F/L$ . Здесь  $A$  – феноменологический параметр, учитывающий особенности физико-химических взаимодействий на поверхности раздела металл-диэлектрик,  $v_F$  – скорость электрона на поверхности Ферми, а  $L$  – эффективная длина пробега электрона до столкновения с границей. Для однородной сферической частицы в предположении изотропного рассеяния электронов Крейбиг получил значение  $L$ , совпадающее с радиусом сферы  $R$ .

Но в случае сферической наноболочки, из-за дополнительного рассеяния электронов и на внутренней и на внешней поверхностях металлического слоя,  $L$  будет зависеть как от внешнего  $R$ , так и от внутреннего  $r$  его радиусов. В разделе 2.2 мы предложили новую корректную оценку  $L$  посредством усреднения длины свободного пробега электронов по всем возможным направлениям при их рассеянии из любой точки на обеих поверхностях, ограничивающих металлический слой [2,11,25]:

$$L(R,a) = R \left[ \frac{1}{1+a^2} - \frac{a}{2} - \frac{1}{4} \frac{(1-a^2)}{(1+a^2)} \cdot (1-a) \ln \frac{(1-a)}{(1+a)} \right],$$

где  $a = \frac{r}{R}$ . При  $r \rightarrow 0$  это выражение переходит в  $L=R$ , что верно для сферы.



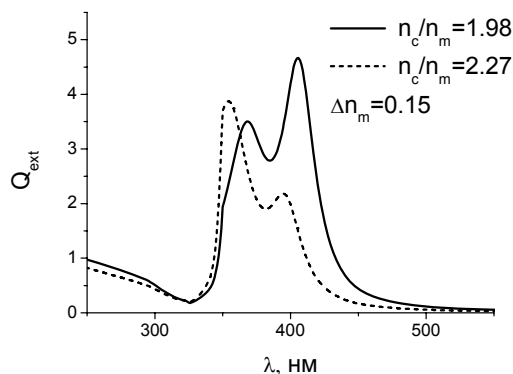
(а) –  $R=5$  нм; (б) –  $R=50$  нм

**Рисунок 1 – Влияние размерного эффекта на спектры ослабления наночастиц с диэлектрическим ядром и серебряной наноболочкой постоянной толщины  $h=2$  нм ( $n_c=2.2$ ;  $n_m=1.4$ ) и различным внешним радиусом**

При этом показано, что действительная часть размерозависимого показателя преломления растет с уменьшением толщины оболочки и/или ее диаметра, в то время как мнимая часть испытывает очень незначительное уменьшение [11]. Установлено, что учет размерной зависимости приводит к существенному уширению и уменьшению интенсивности полосы плазмонного резонанса [11], а в случае частиц большого размера ( $R>50$  нм) с тонкой наноболочкой, также и к ее заметному длинноволновому смещению (см. рисунок 1).

В разделе 2.3, с учетом размерной зависимости показателя преломления металла, исследованы спектральные проявления поверхностных плазмонных резонансов в двухслойных наночастицах – как с металлической оболочкой [1,2,10,26], так и с металлическим ядром [1,12,13,19]. Показана возможность

инверсии относительной интенсивности низкочастотного и высокочастотного плазмонных сферической металлической наноболочки за счет изменения соотношения показателей преломления ядра наночастицы и окружающей ее матрицы (см. рисунок 2) [2]. Раздел 2.4 посвящен анализу дополнительных механизмов уширения полосы плазмонного резонанса, таких как полидисперсность наночастиц (включая разброс как по размерам ядер  $r$  ( $h=\text{const}$ ), так и по толщине  $h$  оболочек ( $r=\text{const}$ )) и гранулярность металлической оболочки [6]. Для полидисперсных систем рэлеевских наночастиц показано, что наибольшее уширение и ослабление полосы плазмонного резонанса наблюдается при разбросе по размерам диэлектрических ядер. Такой разброс приводит к низкочастотному сдвигу внешнего плазмонного резонанса, в то время как разброс по толщинам оболочек приводит к его высокочастотному сдвигу.



**Рисунок 2 – Инверсия относительной интенсивности низко - и высокочастотного плазмонных резонансов наночастицы с серебряной оболочкой при изменении соотношения показателей преломления ядра и матрицы**

В случае гранулярности металлических оболочек уменьшение доли металла в оболочке постоянной толщины приводит к низкочастотному сдвигу и уширению и внешнего, и внутреннего плазмонных резонансов.

В разделе 2.5 с учетом размерной зависимости показателя преломления металла исследованы спектральные проявления поверхностных плазмонных резонансов в наночастицах с ядром и оболочкой из различных благородных металлов [2,26]. Показано, что в предположении полной делокализации электронов проводимости в объеме рэлеевской биметаллической наночастицы структура полосы плазмонного резонанса определяется только объемным соотношением металлов и внешним диаметром частицы, и не зависит от характера распределения металлов внутри частицы.

**Третья глава** диссертационной работы посвящена исследованию спектральных свойств плотноупакованных монослоев металлических наночастиц как рэлеевского, так и субмикронного диапазонов размеров [3,4,5,7,9,14,17,22,23,30-33].

В разделах 3.1 и 3.2 коротко излагается метод, используемый нами для моделирования спектральных характеристик частично-упорядоченных монослоев. Он основан на статистическом описании топологии монослоя с помощью радиальной функции распределения частиц  $g(R)$ , вычисляемой для

твердых сфер в приближении Перкуса-Йевики. Когерентное переоблучение частицами друг друга внутри слоя и интерференция рассеянного ими вперед излучения рассчитываются в предложенном Лаксом квазикристаллическом приближении (ККП) статистической теории многократного рассеяния волн (СТМРВ). Метод расчета в ККП когерентного пропускания  $T_m$  и отражения  $R_m$ , широко используемый в настоящее время для монослоя диэлектрических сфер, модифицирован нами для монослоя металлических наночастиц [3] с учетом размерной зависимости их диэлектрической проницаемости в рамках модели Крейбига. Расчеты в этом приближении находятся в хорошем согласии с экспериментом [5,7,17].

В разделе 3.3 исследуются механизмы длинноволнового концентрационного смещения длины волны  $\lambda_{sp}$  поверхностного плазмонного резонанса (ППР) в монослоях *рэлеевских* металлических наночастиц [3,4,14,23,31,32]. Показано, что при небольших плотностях упаковки (если доля площади монослоя, занятой частицами, т.е. параметр перекрытия  $\eta < 0.35$ ), когда ближний порядок в расположении частиц фактически отсутствует, длинноволновой сдвиг полосы ППР определяется переоблучением *некоррелированных* частиц.

Этот сдвиг может быть интерпретирован как результат увеличения *эффективного показателя преломления* однородной среды монослоя, окружающей отдельную частицу. При плотных упаковках ( $\eta > 0.35$ ) не менее важную роль в сдвиге резонансной частоты играет появление *нового масштаба локализации* плазмонного резонанса в области ближней упорядоченности коррелированных наночастиц (см. рисунок 3). При этом в длинноволновом сдвиге плотноупакованных монослоев *рэлеевских* частиц появляется заметный вклад плазмонных *квадрупольных* мод, вызванный переоблучением частиц

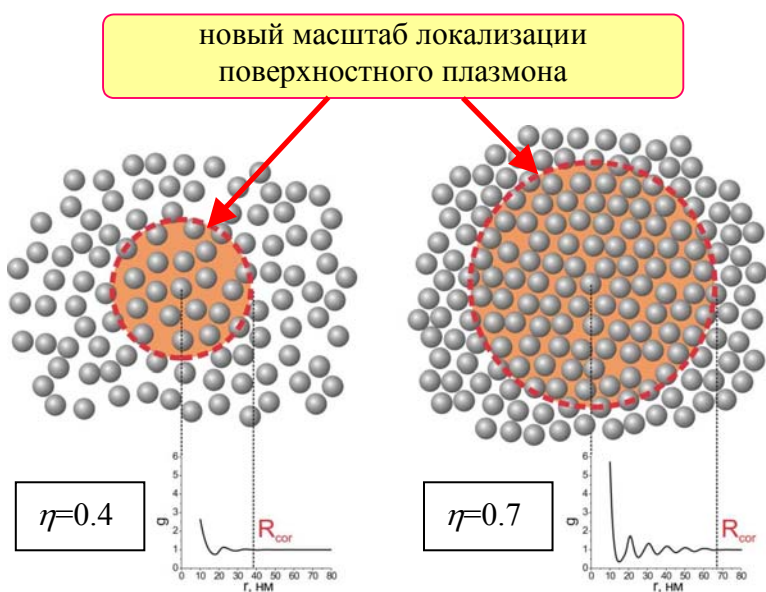


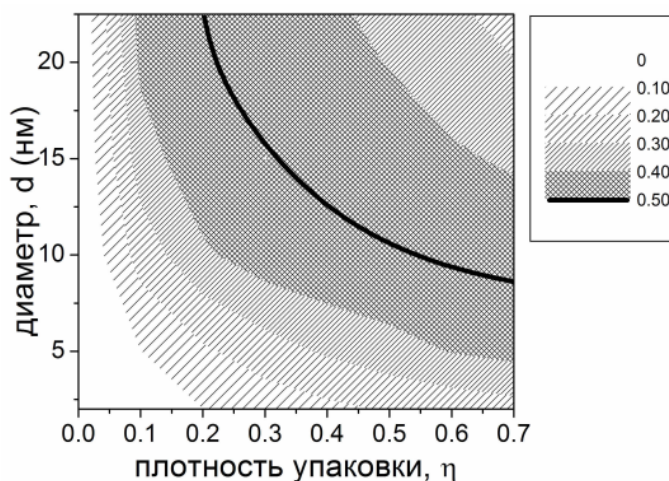
Рисунок 3

сильно неоднородными волнами. Установлено, что конкуренция механизмов нерадиационного и радиационного распада когерентных коллективных колебаний в коррелированном ансамбле частиц приводит к немонотонной зависимости пиковой резонансной поглощательной способности монослоев металлических наночастиц от их размера и поверхностной концентрации (см. рисунок 4).

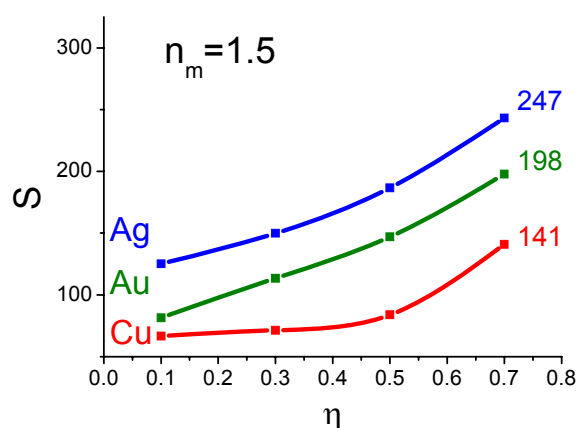
Нами также предложена методика выбора параметров таких монослоев, обеспечивающая достижение максимального поглощения света (~50%) в них на заданной частоте [22]. В заключение раздела, исследуется концентрационное увеличение фактора чувствительности  $S = \Delta\lambda_{sp} / \Delta n_m$  пика резонансного ослабления монослоя рэлеевских ( $d=10$  нм) наночастиц различных благородных металлов (*Ag*, *Au*, *Cu*) к изменению показателя преломления  $n_m$  окружающей среды (см. рисунок 5) [3,33]. Отмечается, что увеличение размера плотноупакованных наночастиц уменьшает фактор  $S$ , так как в этом случае процессы расфазировки излучения, рассеянного на отдельной частице, приводят к расфазировке коллективных взаимодействий в коррелированном агрегате, что сокращает масштаб локализации коллективного плазмона.

В разделе 3.4 изучается возможность формирования полосы усиленного пропускания (так называемого «сверхпропускания» света относительно свободной от металла площади монослоя) в плотноупакованных монослоях субмикронных (свыше ста нанометров) металлических частиц в видимом и ближнем ИК диапазонах [33]. Такие монослои, по существу, являются геометрически инверсными по отношению к оптически толстым металлическим пленкам, перфорированным субволновыми отверстиями, в которых недавно было обнаружено Эббсенном явление «сверхпропускания», имеющее плазмонную природу.

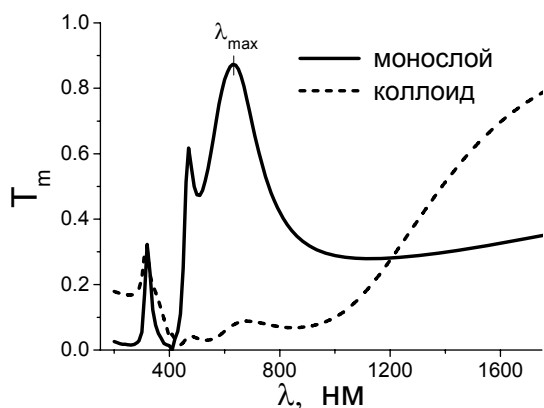
В рамках ККП для плотноупакованных монослоев субмикронных частиц установлено формирование широкой полосы усиленного пропускания с высоким значением коэффициента



**Рисунок 4 – Резонансная поглощательная способность плотноупакованного монослоя серебряных наночастиц как функция их размера и плотности упаковки ( $n_m = 1.75$ )**

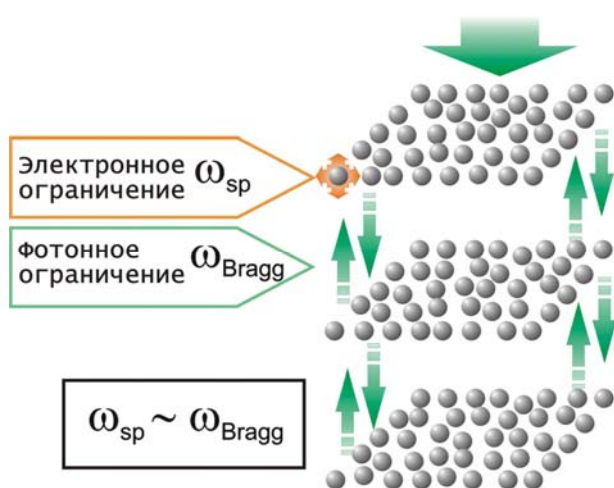


**Рисунок 5 - Фактор чувствительности  $S$  монослоя серебряных наносфер ( $d=10$  нм) как функция плотности упаковки наночастиц**



**Рисунок 6 - Спектры направленного пропускания плотноупакованного монослоя субмикронных серебряных частиц ( $d=200$  нм,  $\eta=0.7$ ,  $n_m=1.5$ ) и коллоидной системы из тех же частиц**

наноструктурах, состоящих из нескольких плотноупакованных слоев металлических наночастиц, разделенных диэлектрическими пленками, как показано на рисунке 7 [5,7-9,15-17,20-22,24,27,28,34]. При использовании пленок субволновой толщины, такие структуры могут рассматриваться как квазиодномерные фотонные кристаллы (ФК) с одновременной реализацией условий электронного и фотонного ограничения [5,15,16,27] или, иными словами, условий плазмонного и Брэгговского резонансов. Согласованное взаимодействие этих двух резонансов может приводить к кооперативным эффектам нового типа. Особого интереса при этом заслуживают эффекты усиления плазмонного поглощения света за счет дополнительного перераспределения энергии в системе, обусловленного интерференцией света между слоями.



**Рисунок 7**

пропускания ( $\sim 80-90\%$ ) в области плазмонного резонанса (см. рисунок б) для всех рассмотренных благородных металлов ( $Ag, Au, Cu$ ).

Нами также обнаружена экстраординарная чувствительность пика полосы «сверхпропускания» к изменению показателя преломления окружающей среды ( $S$  достигает 700), которая может быть использована для создания высокоэффективных сенсоров нового типа [33].

В четвертой главе изучается характер плазмонно-фотонных взаимодействий в многослойных металл-диэлектрических

В разделе 4.1, аналитически выводятся выражения, определяющие спектральные характеристики структуры, состоящей из двух произвольных слоев, через  $T_m$  и  $R_m$  [9,21]. В рамках ККП показывается, что при любой концентрации рэлеевских частиц фазы амплитудных коэффициентов пропускания и отражения отдельного слоя близки к нулю вблизи резонансной длины волны  $\lambda_{sp}$  [21]. Вследствие этого, резонансные



пропускание и отражение двухмонослойной системы изменяются согласованно, *одновременно* достигая максимума при полуволновой ( $\lambda_{sp}/2$ ) и минимума при четвертьволновой ( $\lambda_{sp}/4$ ) оптических толщинах разделительной диэлектрической пленки. Таким образом, резонансное поглощение системы является контрастной функцией толщины пленки, с минимумом при полуволновой и максимумом при четвертьволновой толщинах [9]. В разделе 4.2 проводится общий численный анализ систем, состоящих из произвольного числа монослоев. При этом спектральные свойства каждого отдельного монослоя рассчитываются в рамках ККП, а учет когерентного переоблучения между монослоями производится с использованием метода матрицы переноса (метод ККП-МП) [8,9]. Показывается [21], что основные оптические свойства многослойных структур качественно совпадают с вышеописанными свойствами двухмонослойных структур. Акцентируется неаддитивный характер суммарного поглощения света в четвертьволновых многослойных наноструктурах [5]. Анализируется важная с практической точки зрения чувствительность спектральных характеристик квазиодномерных ФК к малым отклонениям толщин прослоек. Показана очень слабая чувствительность в четвертьволновом случае и высокая чувствительность в полуволновом случае.

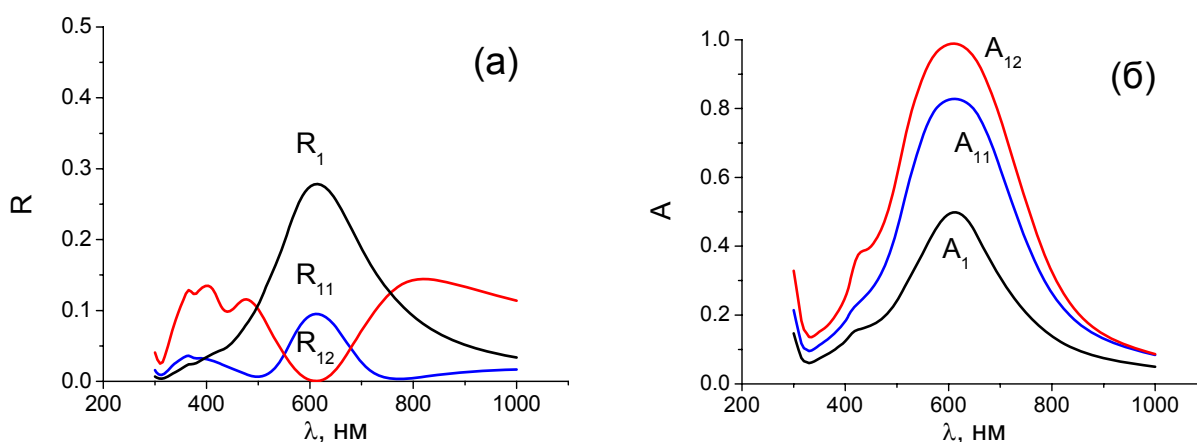
Демонстрируется хорошее согласие [7,20] теоретических предсказаний с *экспериментальными* результатами, полученными для многослойных структур, изготовленных методом поочередного термического испарения в вакууме металлической и диэлектрической фаз, и состоящих из островковых пленок с диаметром серебряных частиц 3.5 нм, разделенных пленками *KCl* с четвертьволновой и полуволновой толщиной [5,7,17,20,28].

В разделе 4.3 исследуются условия оптимизации параметров (размера  $d$  и концентрации  $\eta$  наночастиц) четвертьволновой системы, состоящей из  $N$  *идентичных* монослоев, с целью достижения ее максимальной поглощательной способности на заданной длине волны. Как и для отдельного монослоя, концентрации наночастиц в монослое выбирается из условия согласования заданной длины волны и  $\lambda_{sp}$ . Но в отличие от отдельного монослоя, когда максимальное резонансное поглощение обеспечивается выбором оптимального диаметра наночастиц  $d_{opt}$ , для которого выполняется условие  $T_m \approx R_m$ , в квазиодномерном ФК с четвертьволновыми прослойками максимизация поглощения происходит при  $T_m > R_m$ , что приводит к уменьшению  $d_{opt}$ .

В общем случае, чем больше число монослоев, тем меньшим будет оптимальный диаметр наночастиц  $d_{opt}(N)$ , максимизирующий поглощение света в системе на частоте плазмонного резонанса [21]. С другой стороны, чем больше  $d$  и (или)  $\eta$ , тем меньшее количество слоев  $N$  требуется для достижения режима насыщения резонансной поглощающей способности, но тем ниже ее значение.

В принципе, идеально поглощающую свет систему можно получить, используя очень большое число монослоев, сформированных из наночастиц очень маленького размера. Однако, практические ограничения (большая толщина покрытия и его высокая стоимость) заставляют подробнее исследовать способы увеличения поглощения в системах, состоящих именно из малого числа монослоев. Одна из таких возможностей, предложенная нами в разделе 4.4, заключается в использовании систем с *градиентно возрастающим размером или концентрацией наночастиц от слоя к слою* (т.е. размерно-градиентных и концентрационно-градиентных систем, соответственно). В этом случае возрастающая отражающая способность [9] последующих слоев позволяет добиться сравнимости интенсивности отраженных потоков и с помощью деструктивной интерференции избавиться от паразитного отражения от системы вблизи  $\lambda_{sp}$  [9,22,24] ( $R_{12}(\lambda_{sp}) \approx 0$ , см. рисунок 8(a)).

Показано, что наиболее эффективными в использовании являются *размерно-градиентные* системы ( $\eta \approx const$ ,  $d$  возрастает). Поскольку в электростатическом режиме  $\lambda_{sp}$  определяется только параметром перекрытия  $\eta$  и почти не зависит от  $d$  [3,9], частотное согласование отдельных монослоев в этом случае дает возможность достижения экстраординарно высокой резонансной поглощательной способности градиентных покрытий, состоящих всего из двух



(а) – отражательная способность; (б) – поглощательная способность

**Рисунок 8 – Спектры оптимизированных наноструктур из монослоев серебряных наночастиц: отдельный монослой ( $A_1$ ,  $R_1$ ), двухмонослойные четвертьволновые неградиентная ( $A_{11}$ ,  $R_{11}$ ) и размерно-градиентная ( $A_{12}$ ,  $R_{12}$ ) системы. Все монослои имеют одинаковый параметр перекрытия  $\eta=0.7$  ( $\lambda_{sp}=610$  нм). Оптимальные диаметры наночастиц, обеспечивающие максимальное резонансное поглощение наноструктур:  $d=8.8$  нм в монослое;  $d_1=d_2=6.6$  нм в неградиентной двухмонослойной, и  $d_1=4.7$  нм,  $d_2=20$  нм в градиентной двухмонослойной системах**

монослоев ( $A_{12}(\lambda_{sp}) \approx 98\%$ , см. рисунок 8(б)). Показано, что на заданной частоте для размерно-градиентной системы всегда можно добиться большего



резонансного поглощения, чем в системе из того же числа *идентичных* монослоев [24,34]. Более того, интегральная поглощательная способность при этом также увеличивается. Еще одним следствием градиентной организации структуры является асимметрия ее отражательной и поглощательной способностей относительно направления волнового вектора, что может приводить к их значительному скачку при инверсии направления падения света (к примеру, для градиентной системы на рисунке 8 скачок резонансного отражения достигает  $\Delta R=R_{21}-R_{12}=65\%$ ).

Экспериментальная реализация четвертьволновых градиентных систем  $Ag/Al_2O_3$  посредством создания многослойных структур из серебрянных островковых пленок с одновременным градиентом размера и концентрации наночастиц [9] подтвердила высокую эффективность градиентных систем при создании тонких широкополосных сильнопоглощающих покрытий для видимого диапазона длин волн.

В **приложении А** к диссертационной работе представлены таблицы значений резонансных длин волн коллективных плазмонных возбуждений в плотноупакованных монослоях серебрянных наночастиц в зависимости от их размеров и поверхностных концентраций. В **приложении Б** приведена методика оценки параметров плотноупакованного монослоя, обеспечивающего максимальную поглощательную способность на заданной частоте.

## ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В данной диссертационной работе исследованы процессы взаимодействия электромагнитных волн с металл-диэлектрическими наноструктурами, состоящими из сферических наночастиц, покрытых металлической оболочкой, а также однородных металлических сферических наночастиц с частичной упорядоченностью их пространственного расположения в виде плотноупакованных монослоев и многослойных структур. По результатам работы можно сделать следующие выводы:

### Основные научные результаты диссертации

1. Разработана модель, в которой учитывается размерная зависимость диэлектрической проницаемости сферической металлической нанооболочки, основанная на представлении об ограничении длины свободного пробега электронов проводимости в металлических наноструктурах, что позволяет рассмотреть дополнительный механизм распада плазмонных возбуждений и корректно выявить их проявления в спектрах поглощения и рассеяния [1, 2, 6].

2. Установлена возможность инверсии относительной интенсивности низкочастотного и высокочастотного плазмонов сферической металлической оболочке за счет изменения соотношения показателей преломления диэлектрических ядра наночастицы и окружающей ее матрицы [2].
3. Для сферических наночастиц с металлической оболочкой проанализированы дополнительные механизмы спектрального уширения полос плазмонного поглощения, обусловленные гранулярностью оболочки и полидисперсностью наночастиц [6].
4. Установлены механизмы длинноволнового смещения полосы плазмонного ослабления в монослоях металлических наночастиц. Показано, что при небольших плотностях упаковки наночастиц основным механизмом являются когерентные взаимодействия в монослое, которые могут быть интерпретированы как увеличение показателя преломления эффективной среды для ансамбля некоррелированных частиц. С увеличением плотности упаковки наночастиц возрастает дополнительное смещение плазмонной полосы вследствие пространственной коррелированности наночастиц, приводящей к появлению нового дифракционного масштаба в монослое [3].
5. Обнаружено немонотонное изменение пиковой частотнозависимой резонансной поглощательной способности монослоев металлических наночастиц с увеличением их размера и поверхностной концентрации. Предложена методика выбора параметров таких монослоев, обеспечивающая достижение максимального поглощения света в них на заданной частоте [9].
6. Установлено, что при возрастании поверхностной концентрации наночастиц происходит значительное увеличение чувствительности длины волны поверхностного плазмонного резонанса в частично-упорядоченных монослоях металлических наночастиц к изменению показателя преломления окружающей среды. [3].
7. Показано, что выбор четвертьволновой оптической толщины разделительных диэлектрических прослоек в многослойных системах на базе плотноупакованных монослоев металлических наночастиц обеспечивает максимальную поглощательную способность в области поверхностного плазмонного резонанса за счет одновременной минимизации как пропускания, так и отражения [7].
8. Предложена градиентная организация многослойных металл-диэлектрических наноструктур, обеспечиваемая увеличением размера и/или концентрации наночастиц от монослоя к монослою, которая позволяет значительно усилить суммарную поглощательную способность. Показано, что практически полное широкополосное поглощение света может быть достигнуто уже в двухмонослойных градиентных наноструктурах [9].

## Рекомендации по практическому использованию результатов

Проведенное в данной диссертации исследование показало, что металл-диэлектрические наноструктуры в виде плотноупакованных монослоев металлических сферических наночастиц и их многослойных комбинаций обладают нетривиальными оптическими свойствами и являются высокоперспективными для создания оптических приборов (сенсоров, детекторов, солнечных элементов и т.п.) нового поколения. При этом привлекательным преимуществом таких наноструктур по сравнению с более сложными метаматериалами является относительная дешевизна их создания и, следовательно, возможность их массового использования уже в самом ближайшем будущем.

Так предлагается использовать для создания оптических переключателей значительный скачок интенсивности низкочастотного и высокочастотного плазмонных возбуждений металлической наноболочки при малом изменении показателей преломления ядра  $n_c$  или матрицы  $n_m$ , приводящем к изменению соотношения  $n_c/n_m < 2$  на  $n_c/n_m > 2$ .

Двукратное возрастание чувствительности частоты плазмонного ослабления света в плотноупакованных монослоях золотых и серебряных наночастиц к локальному диэлектрическому окружению увеличит эффективность биосенсоров на основе малых металлических наночастиц.

Высокая чувствительность спектрального положения полосы усиленного пропускания света плотноупакованными монослоями субмикронных металлических частиц к изменению показателя преломления окружающей среды может быть использована для создания эффективных оптических сенсоров нового типа.

Размерно-градиентные четвертьволновые металлические наноструктуры предлагаются в качестве широкополосных, сильнопоглощающих покрытий наноразмерной толщины (резонансное поглощение достигает 99% в видимом диапазоне на покрытиях из двух монослоев с общей толщиной порядка 80 нм).

Сильная чувствительность поглощательной способности градиентных систем к инверсии волнового вектора также может быть использована при создании ультракомпактных однонаправленных светопоглощающих либо светоотражающих покрытий.

# СПИСОК ПУБЛИКАЦИЙ СОИСКАТЕЛЯ ПО ТЕМЕ ДИССЕРТАЦИИ

## Статьи в научных журналах

1. Качан, С.М. Плазмонные резонансы в двухслойных сферических металлосодержащих наночастицах / С.М. Качан // Вес. Нац. акад. навук Беларусі. Сер. фіз.-мат. навук. – 2000. – №2. – С.99-104.
2. Kachan, S.M. Resonance absorption spectra of composites containing metal-coated nanoparticles / S.M. Kachan, A.N. Ponyavina // Journal of Molecular Structure. – 2001. – V.563-564. – P.267-272.
3. Kachan, S.M. Spectral properties of close-packed monolayers consisted of metal nanospheres / S.M. Kachan, A.N. Ponyavina // Journal of Physics: Condensed Matter. – 2002. – Vol.14. – P. 103-111.
4. Kachan, S.M. The spatial ordering effect on spectral properties of close-packed metallic nanoparticle monolayers / S.M. Kachan, A.N. Ponyavina // Surface Science. – 2002. – V. 507-510. – P. 603-608.
5. Zamkovets, A.D. Optical Properties of Thin-Film Metal-Dielectric Nanocomposites / A.D. Zamkovets, S.M. Kachan, A.N. Ponyavina // Physics and Chemistry of Solid State. – 2003. – V. 4, № 4. – P. 627-631.
6. Шевченко, Г.П. Оптические резонансы систем наночастиц с металлической оболочкой / Г.П. Шевченко, А.Н. Понявина, С.М. Качан, З.М. Афанасьева, В.С. Гурин // Журнал Прикладной Спектроскопии. – 2003. – Т. 70, № 3. – С. 405-412.
7. Замковец, А.Д. Оптические спектры металл-диэлектрических нанокомпозитов со слоистой субволновой структурой / А.Д. Замковец, С.М. Качан, А.Н. Понявина, Н.И. Сильванович // Журнал Прикладной Спектроскопии. – 2003. – Т. 70, № 4. – С. 526-530.
8. Ponyavina, A.N. Statistical theory of multiple scattering of waves applied to three-dimensional layered photonic crystals / A.N. Ponyavina, S.M. Kachan, N.I. Sil'vanovich // Journal of Optical Society of America B. – 2004. –V.21. – P. 1866-1875.
9. Kachan, S. High-absorbing gradient multilayer coatings with silver nanoparticles / S. Kachan, O. Stenzel, A. Ponyavina // Applied Physics B. – 2006. – V.84. – P.271-276.

## Материалы научных конференций

10. Качан, С.М. Резонансное поглощение света в системах двухслойных наночастиц типа металл-диэлектрик / С.М. Качан, А.Н. Понявина // Лазерная физика и спектроскопия: материалы IV междунар. конф., Гродно, 4-8 Октября 1999 г.: в 2 ч. / Гродн. гос. ун-т; под ред. В.К. Кононенко. – Гродно:ГрГУ,1999. - Ч.2. – С.188-190.

11. Kachan, S.M. The limitation of electron mean free path in spherical nanosize particles with a metal shell / S.M. Kachan, A.N. Ponyavina // *Physics, Chemistry and Application of Nanostructures: Reviews and Short Notes to Nanomeeting'99*, Minsk, Belarus, 17-21 May 1999 / ed. by V.E. Borisenko [et al.]. – Singapore - New Jersey - London - Hong-Kong: World Scientific, 1999. – P. 103-107.
12. Vorobyova, S.A. The interphase synthesis and some characteristics of gold nanoparticles / S.A. Vorobyova, A.I. Lesnikovich, N.S. Sobal, S.M. Kachan // *Physics, Chemistry and Application of Nanostructures: Reviews and Short Notes to Nanomeeting'99*, Minsk, Belarus, 17-21 May 1999 / ed. by V.E. Borisenko [et al.]. – Singapore - New Jersey - London - Hong-Kong: World Scientific, 1999. – P. 314-317.
13. Хайруллина, А.Я. Оптические свойства плотноупакованного монослоя оксидированных наноразмерных гранул меди / А.Я. Хайруллина, Т.В. Олейник, С.М. Качан, С.А. Гуревич, В.М. Кожевин, Д.А. Явсин // *Наноструктурные материалы-2000: Беларусь – Россия: материалы науч.-практич. семинара*, Минск, Беларусь, 30-31 Мая 2000 г. / Минск, 2000. – С.139-142.
14. Kachan, S.M Optical characteristics of islands films consisted of metallic nanoparticles formed in the laser torch plasma / S.M. Kachan, A.N. Ponyavina // *Plasma Physics and Plasma Technology PPPT-3: contributed papers to III International Conference*, Minsk, Belarus, 18-22 September, 2000: in 2 volumes / Minsk, 2000. – V.2. – P.503-506.
15. Kachan, S.M Optical properties of layer-periodic metal nanoparticle systems in the visible / S.M. Kachan, A.N. Ponyavina // *Physics, Chemistry and Application of Nanostructures: Reviews and Short Notes to Nanomeeting'2001*, Minsk, Belarus, 22-25 May 2001 / ed. by V.E. Borisenko [et al.]. – Singapore - New Jersey - London - Hong-Kong: World Scientific, 2001. – P. 235-238.
16. Kachan, S.M. Spectral characteristics of confined photonic and plasmonic nanostructures / S.M. Kachan, A.N. Ponyavina // *Proceedings of SPIE*. – 2002. – V.4705. – P.88-94.
17. Zamkovets, A.D. Surface plasmon resonances and light selection in metal-dielectric nano-structures of various spatial arrangement / A.D. Zamkovets, S.M. Kachan, A.N. Ponyavina // *Physics, Chemistry and Application of Nanostructures: Reviews and Short Notes to Nanomeeting'2003*, Minsk, Belarus, 20-23 May 2003 / ed. by V.E. Borisenko [et al.]. – Singapore - New Jersey - London - Hong-Kong: World Scientific, 2003. – P. 151-154.
18. Khairullina, A. Planar Cu nanostructure: experimental and theoretical integral light scattering characteristics / A. Khairullina, T. Olshanskaya, V. Babenko, V. Kozhevin, D. Yavsin, S. Gurevich, S. Kachan // *Physics, Chemistry and Application of Nanostructures: Reviews and Short Notes to Nanomeeting'2003*, Minsk, Belarus,

20-23 May 2003 / ed. by V.E. Borisenko [et al.]. – Singapore - New Jersey - London - Hong-Kong: World Scientific, 2003. – P. 175-177.

19. Babenko, V.A. Effect of a metallic nanoparticle shape on spectra of plasmon resonance absorption / V.A. Babenko, R.A Dynich., S.M Kachan., A.N.Ponyavina, A.Ja. Khairullina // Plasma Physics and Plasma Technology PPPT-4: contributed papers to IV International Conference, Minsk, Belarus, 15-19 September, 2003: in 2 volumes / Minsk, 2003. – V.2. – P.693-696.

20. Ponyavina, A.N. Light selection in metal-dielectric nanocomposites of subwavelength layered structure / A.N.Ponyavina, A.D.Zamkovetz, S.M.Kachan // Nanocomposites: Development, Production, Application: collected papers from the International Scientific and Technical Conference on Novel Composite Materials (NC'04), Sochi, Russia, 27 September - 1 October 2004 / ed. by A.A.Berlin, I.G.Assovskiy. – Moscow: Torus Press, 2004. – P. 55-56.

21. Качан, С.М. Сильнопоглощающие градиентные многослойные металлические наноструктуры / С.М. Качан, А.Н. Понявина // Лазерная физика и оптические технологии: материалы VI междунар. конф., Гродно, 25-29 Сентября 2006 г.: в 2 ч. / Гродн. гос. ун-т; редколлегия: Н.С. Казак [и др.]. – Гродно:ГрГУ, 2006. - Ч.1. – С. 239.

22. Качан, С.М. Поглощение квазиодномерных металлических фотонных кристаллов / С.М. Качан, А.Н. Понявина // Лазерная физика и оптические технологии: материалы VI междунар. конф., Гродно, 25-29 Сентября 2006 г.: в 2 ч. / Гродн. гос. ун-т; редколлегия: Н.С. Казак [и др.]. – Гродно:ГрГУ, 2006. - Ч.1. – С. 236-238.

23. Kachan, S.M Optical diagnostics of 2D self-assembled silver nanoparticles arrays/ S.M. Kachan, A.N. Ponyavina // Physics, Chemistry and Application of Nanostructures: Reviews and Short Notes to Nanomeeting'2007, Minsk, Belarus, 22-25 May 2007 / ed. by V.E. Borisenko [et al.]. – New Jersey - London - Singapore - Beijing - Shanghai - Hong-Kong - Taipei - Chennai: World Scientific, 2007. – P. 165-168.

24. Kachan, S.M. Total light absorption in ultrathin size-gradient metal-dielectric nanostructures / S. M. Kachan, A. N. Ponyavina // Proceedings of SPIE. – 2007. – V.6728. – P.6728 38.

### **Тезисы докладов научных конференций**

25. Качан, С.М. Размерные эффекты в металлических бисферах и сферах с металлической оболочкой / С.М. Качан // Оптика-99: тез. докл. междунар. конф. молодых ученых и специалистов, С.-Петербург, Россия, 19-21 Октября, 1999 / СПб, 1999. – С. 20-21.

26. Kachan, S.M. Resonance absorption spectra of composites containing metal coated nanoparticles / S.M. Kachan, A.N. Ponyavina // XXV European Congress on

Molecular Spectroscopy: Book of Abstracts, Coimbra, Portugal, 27 August – 1 September 2000 / Coimbra, 2000. – P.107.

27. Kachan, S.M. Transmission and reflection coefficients of periodic metallic nanospheres structures in the visible / S.M. Kachan, A.N. Ponyavina // Conference on Lasers and Electro-Optics Europe CLEO-2000, Nice, France, 10-15 September 2000 / Nice, 2000. – СМЕ 6.

28. Замковец, А.Д. Управление оптическими спектрами металл-диэлектрических наноконструкций со слоистой структурой / А.Д. Замковец, С.М. Качан, А.Н. Понявина // Международный оптический конгресс «Оптика-XXI век»: «Фундаментальные проблемы оптики», сб. трудов межд. конф., С.-Петербург, Россия, 14-17 октября 2002 / СПб, 2002. – С. 97-98.

29. Khairullina, A. Optical Properties of Monolayers of Nanosized Copper Granules / A.Khairullina, T.Olshanskaya, S.Gurevich, V.Kozhevnikov, D.Yavsin, S.Kachan // Международный оптический конгресс «Оптика-XXI век»: «Фундаментальные проблемы оптики», сб. трудов межд. конф., С.-Петербург, Россия, 14-17 октября 2002 / СПб, 2002. – С. 95-96.

30. Ponyavina, A.N. Polarization properties and structural diagnostics of plasmonic planar nanoarrays / A.N. Ponyavina, R.A. Dynich, S.M. Kachan // Photopolarimetry in Remote Sensing: Abstracts of NATO Advanced Study Institute, Yalta, Ukraine, 20 September - 3 October 2003 / Yalta, 2003. – P.77.

31. Kachan, S.M. Optical Response and Coherent Resonance Interactions in 2D Plasmonic Nanoparticle Structures / S.M. Kachan, A.N. Ponyavina // Int.l Conf. on Coherent and Nonlinear Optics/ Int. Conf. on Lasers, Applications, and Technologies ICONO/LAT-2005: Technical Digest, S.-Petersburg, Russia, 11-15 May 2005 / S. – Petersburg, 2005. – IWC-6.

32. Kachan, S.M. Surface plasmon polaritons in 2D metal nanoparticle structures / S.M. Kachan, A.N. Ponyavina // Photonic and Electromagnetic Crystal Structures PECS-VI: Book of Abstracts of the International Symposium, Aghia Pelaghia, Crete, Greece, 19-24 June 2005 / Crete, 2005.

33. Kachan, S.M. Enhanced Optical Sensitivity of Close-Packed Arrays of Noble-Metal Nanoparticles to Environmental Changes/ S.M. Kachan, A.N. Ponyavina // Int. Conf. on Coherent and Nonlinear Optics/ Int. Conf. on Lasers, Applications, and Technologies ICONO/LAT-2007: Technical Digest, Minsk, Belarus, 28 May – 1 June 2007 / Minsk, 2007. – I02-V-6.

34. Kachan, S.M. Gradient Multilayer Nanostructured Plasmonic Coatings / S.M. Kachan, A.N. Ponyavina // Int. Conf. on Coherent and Nonlinear Optics/ Int. Conf. on Lasers, Applications, and Technologies ICONO/LAT-2007: Technical Digest, Minsk, Belarus, 28 May – 1 June 2007 / Minsk, 2007. – I10-V-2.

## РЭЗЮМЭ

Качан Святлана Міхайлаўна

Уплыў кагерэнтных рэзанансных узаемадзеянняў  
на аптычныя ўласцівасці метал-дыэлектрычных нанаструктур

Ключавыя словы: МЕТАЛІЧНАЯ НАНАЧАСЦІНКА, ПАВЯРХОЎНЫ ПЛАЗМОННЫ РЭЗАНАНС, ЧАСТКОВА-СПАРАДКАВАНЫЯ НАНАСТРУКТУРЫ, ФАТОННЫ КРЫШТАЛЬ.

**Мэта даследвання** - усталяваць заканамернасці ўзаемадзеяння электрамагнітных хваль з часткова-спарадкаванымі сістэмамі металічных нанасфер і двухпластовымі металазмяшчаючымі наначасцінкамі ў дыяпазоне частот павярхоўнага плазмоннага рэзанансу, а таксама знайсці сувязь паміж паказанымі заканамернасцямі і геаметрычнымі параметрамі нанаструктур.

**Метады даследвання** - сукупнасць аналітычных і лікавых метадаў з перавагай падыходаў, якія базуюцца на набліжэннях статыстычнай тэорыі шматразовага рассеявання хваль

**Упершыню атрыманы наступныя вынікі.** Для часцінак з металічнай нанаабалонкай распрацавана мадэль памернай залежнасці дыэлектрычнай пранікальнасці металу, якая ўлічвае дадатковае згасанне плазмонных узбуджэнняў за рахунак рассеявання электронаў на межах абалонкі, і звязаныя з ім эфекты пашырэння і спектральнага зруху паласы плазмоннага паслабленні святла. Усталявана, што кагерэнтныя ўзаемадзеянні ў часткова-спарадкаваным шчыльнаўпакаванам манаслое дыпольных металічных наначасцінак фармуюць лакалізаваны ў межах вобласці блізкай спарадкаванасці калектыўны плазмонны рэзананс, высокачуллівы да змянення дыэлектрычнай пранікальнасці навакольнага асяроддзя. Выяўлена, што канкурэнцыя працэсаў радыяцыйнага і нерадыяцыйнага распадаў калектыўнага плазмона ў шчыльнаўпакаванам манаслое дыпольных металічных наначасцінак прыводзіць да неманатоннага змянення рэзананснай, частотна-залежнай паглынальнай здольнасці манаслоя з канцэнтрацыяй і памерам наначасцінак, што дазваляе вызначыць параметры манаслоя, максімальна паглынаючага на зададзенай частаце. Паказана, што градыент па памеры і канцэнтрацыі дыпольных металічных наначасцінак у чвэрцьхвалевай шматслойнай сістэме на базе шчыльнаўпакаваных манаслаеў металічных наначасцінак забяспечвае ўзмацненне паглынання ў дыяпазоне частот плазмоннага рэзанансу і дазваляе атрымаць практычна 100% шырокапалоснае паглынання ўжо ў двухманаслаевых пакрыццях нанапамернай таўшчыні.



## РЕЗЮМЕ

Качан Светлана Михайловна

Влияние когерентных резонансных взаимодействий  
на оптические свойства металл-диэлектрических наноструктур

**Ключевые слова:** МЕТАЛЛИЧЕСКАЯ НАНОЧАСТИЦА, ПОВЕРХНОСТНЫЙ ПЛАЗМОННЫЙ РЕЗОНАНС, ЧАСТИЧНО-УПОРЯДОЧЕННЫЕ НАНОСТРУКТУРЫ, ФОТОННЫЙ КРИСТАЛЛ.

**Цель работы** – установить закономерности взаимодействия электромагнитных волн с частично-упорядоченными системами металлических наносфер и двухслойными металлосодержащими наночастицами в диапазоне частот поверхностного плазмонного резонанса, а также найти связь между указанными закономерностями и геометрическими параметрами наноструктур.

**Методы исследования** – совокупность аналитических и численных методов с преобладанием подходов, базирующиеся на приближениях статистической теории многократного рассеяния волн

**Впервые получены следующие результаты.** Для частиц с металлической нанооболочкой разработана модель размерной зависимости диэлектрической проницаемости металла, учитывающая дополнительное затухание плазмонных возбуждений за счет рассеяния электронов на границах оболочки, и связанные с ним эффекты уширения и спектрального сдвига полосы плазмонного ослабления света. Установлено, что когерентные взаимодействия в частично-упорядоченном плотноупакованном монослое металлических наночастиц формируют локализованный в пределах области ближней упорядоченности коллективный плазмонный резонанс, высокочувствительный к изменению диэлектрической проницаемости окружающей среды. Обнаружено, что конкуренция процессов радиационного и нерадиационного распада коллективного плазмона в плотноупакованном монослое металлических наночастиц приводит к немонотонному изменению резонансной, частотно-зависимой поглотительной способности монослоя от концентрации и размера наночастиц, что позволяет определить параметры монослоя, максимально поглощающего на заданной частоте. Показано, что градиент по размеру и концентрации металлических наночастиц в четвертьволновой многослойной системе на базе плотноупакованных монослоев металлических наночастиц обеспечивает усиление поглощения в диапазоне частот плазмонного резонанса и позволяет получить практически 100% широкополосное поглощение уже в двухмонослойных покрытиях наноразмерной толщины.

## SUMMARY

Kachan Svetlana Mikhailovna

Effect of coherent resonant interactions  
on optical properties of metal-dielectric nanostructures

**Keywords:** METALLIC NANOPARTICLE, SURFACE PLASMON RESONANCE, PARTIALLY-ORDERED NANOSTRUCTURES, PHOTONIC CRYSTALS.

**Objective of the work** – to determine regularities of electromagnetic waves interactions with partially-ordered systems of metallic nanospheres and core-shell metalline nanoparticles in the frequency region of surface plasmon resonance, and to find relationships between the defined regularities and geometrical parameters of nanostructures.

**Research methods** – set of analytical and numerical methods with the prevalence of approaches based on approximations of statistical theory of multiple scattering of waves.

**Originally obtained results.** For the particles with metallic nanoshells, we have developed the model of size dependence of metal permittivity, which takes into account the additional damping of plasmonic excitations due to scattering of electrons on the nanoshell boundaries and, thus, describe the related effects of spectral broadening and shift of plasmon extinction band. It was found that the coherent interactions in partially-ordered close-packed monolayers of dipole metal nanoparticles result in a collective plasmon resonance, which is localized on the scale of the near-range monolayer ordering and is highly sensitive to the environmental changes. It was established that the interplay between processes of radiative and non-radiative decay of collective plasmons in close-packed monolayers of dipole metallic nanoparticles leads to non-monotonic change of resonant frequency-dependent monolayer absorption with growing nanoparticles concentration and size. This effect enables one to determine monolayer parameters that would maximize its absorptance at some given frequency. It was shown that the size and concentration gradient of dipole metallic nanoparticles in a quarter-wavelength multilayer system consisting of close-packed monolayers can produce an absorption enhancement in the frequency range of plasmonic resonance, and allows one to get almost total and broadband absorbance already in two-monolayer coatings with nanosize thickness.

КАЧАН  
Светлана Михайловна

ВЛИЯНИЕ КОГЕРЕНТНЫХ РЕЗОНАНСНЫХ ВЗАИМОДЕЙСТВИЙ  
НА ОПТИЧЕСКИЕ СВОЙСТВА МЕТАЛЛ-ДИЭЛЕКТРИЧЕСКИХ  
НАНОСТРУКТУР

Автореферат диссертации на соискание ученой степени  
кандидата физико-математических наук  
по специальности 01.04.05 – оптика

---

Подписано в печать 21.01.2008. Формат 60x90/16  
Тип бумаги – офисная. Печать офсетная.  
Объем: 1.7 усл. печ. л.; 1.2 уч. изд. л.  
Тираж 60 экз. Заказ №1

---

Институт физики им. Б.И. Степанова Национальной академии наук Беларуси  
Пр. Независимости 68, 220072 Минск, Республика Беларусь  
Отпечатано на ризографе Институт физики им. Б.И. Степанова НАН Беларуси  
Лицензия ЛП №20 от 27.05.03