

Регулирование отражательной способности границы раздела двух сред монослоем наночастиц

А.С.Шалин, С.Г.Моисеев

Рассмотрена граничная задача отражения световой волны поверхностью полубесконечной среды, на которой имеется упорядоченный монослой сферических наночастиц. Получены аналитические выражения для напряженностей электрических полей внутри и вне такой структуры с учетом электродинамического взаимодействия частиц монослоя между собой и с подложкой. Показано, что наличие метаслоя может приводить к увеличению или уменьшению коэффициента отражения по сравнению со случаем френелевского отражения от чистой поверхности; исследованы условия реализации конструктивной и деструктивной интерференции. Получено и исследовано условие полного поглощения отражения, записанное в виде соотношения между параметрами монослоя и среды.

Ключевые слова: метаматериал, монослой наночастиц, рассеяние света малыми частицами.

1. Введение

Большое внимание привлекают в последнее время исследования оптических свойств искусственных материалов, состоящих из различного рода наноразмерных объектов, внедренных в некую матрицу, которые получили в литературе название «метаматериалы» [1–4]. Указанный интерес вызван возможностью наблюдения ряда необычных эффектов, обусловленных композиционной структурой среды, а также спецификой рассеяния света наночастицами. Действительно, за счет изменения материальных и геометрических параметров системы можно, например, получить среды с гигантским, сверхмалым либо отрицательным показателем преломления [1, 5, 6], а также с показателем преломления, реальная часть которого близка к единице [7].

Для теоретического описания монослоя из сферических кластеров, расположенного на поверхности среды, в работах [8, 9] применяется прямое решение уравнений Максвелла в сферической системе координат. Хотя решение, предложенное Ми [10], получено для дифракции на одной сфере, оно может быть распространено и на системы из любого количества взаимодействующих частиц путем введения формализма $3j$ -символов и символов Клебша–Гордана, позволяющих учесть многократность и когерентность рассеяния света на нанокластерах в упомянутых структурах [8]. Однако использование данного подхода не всегда целесообразно. Действительно, как

было показано в [8, 9, 11, 12], взаимодействие частиц является дальнедействующим и требует учета весьма большого количества взаимно влияющих элементов. Вследствие этого возможно лишь численное решение задачи указанным методом, и оно требует больших затрат машинного времени. Подобные же затруднения имеют место в случае применения иных методов, использующих прямое решение уравнений Максвелла, как то: метод конечных элементов (FEM) [13, 14], метод конечных временных разностей (FDTD) [15, 16], метод связанных диполей (CDA) [17] и др. Более того, учет взаимодействия слоя из нанообъектов с подложкой, проведенный в работах [9, 14, 17], приводит к дополнительному существенному усложнению вычислений либо требует использования ряда приближений, например усреднения показателя преломления подложки и окружающей среды [18], выполняемого в различных источниках по-разному, введения мнимого наноструктурированного слоя внутри среды, являющегося отражением реального [9], и т. д.

В работах [4, 11, 19] нами предложен теоретический подход, позволяющий получить относительно простое аналитическое решение задачи о рассеянии света системой нанокластеров в рамках приближения длинных волн. Теория основана на формализме интегральных уравнений [8, 20], не требует использования максвелловских граничных условий при расчете параметров взаимодействия наночастиц в слое, а также, как будет показано ниже, позволяет напрямую учесть взаимное поляризующее влияние среды и наноструктурированного слоя. Следует отметить, что возможность получения аналитического решения является весьма важной для обратных оптических задач, когда результирующие оптические свойства заданы априори, а материальные и геометрические параметры агрегата, необходимые для их достижения, неизвестны. В связи с этим нами предлагается использовать упомянутый выше метод интегральных уравнений, результат применения которого уточняется электродинамическим решением с помощью метода конечных элементов, реализованного в программном продукте COMSOL Multiphysics [21].

А.С.Шалин. Ульяновский филиал Института радиотехники и электроники им. В.А.Котельникова РАН, Россия, 432011 Ульяновск, ул. Гончарова, 48/2, Ульяновский государственный университет, Россия, 432700 Ульяновск, ул. Л. Толстого, 42; e-mail: shalin_a@rambler.ru

С.Г.Моисеев. Ульяновский филиал Института радиотехники и электроники им. В.А.Котельникова РАН, Россия, 432011 Ульяновск, ул. Гончарова, 48/2, Ульяновский государственный технический университет, Россия, 432027 Ульяновск, ул. Северный Венец, 32; e-mail: serg-moiseev@yandex.ru

Поступила в редакцию 27 марта 2009 г., после доработки – 7 августа 2009 г.

Таким образом, настоящая работа посвящена исследованию интерференционного взаимодействия монослоя упорядоченно расположенных сферических наночастиц с подложкой. На основе полученных выражений для полей внутри и вне системы рассмотрены условия уменьшения либо увеличения ее отражательной способности. Получено и исследовано условие полного погашения отражения от среды (условие полного просветления), определяющее необходимые для просветления подложки материальные и геометрические параметры монослоя наночастиц, а также показано, что эффект просветления возможен в широком диапазоне длин волн.

2. Основные уравнения

Рассматриваемая система слой сферических наночастиц – подложка в поле внешнего оптического излучения изображена на рис. 1. Протяженность слоя и подложки в плоскости xu примем бесконечной. Для расчета электромагнитного отклика системы воспользуемся формализмом интегральных уравнений [4, 8, 11, 12], который и ранее применялся нами для исследования различных наноструктурированных агрегатов. При этом в рамках данной работы ограничимся линейным приближением, при котором поляризации среды и частиц являются линейными функциями напряженности поля.

Согласно указанному подходу, поле в каждой точке пространства может быть записано в следующем общем виде:

$$E(\mathbf{r}, t) = E_I(\mathbf{r}, t) + \int_V \text{rot rot} \frac{P(\mathbf{r}', t - R/c)}{R} dV' + \frac{3}{4\pi} \sum_{j=1}^N \int_{V_j} \text{rot rot} \frac{\epsilon_j(\mathbf{r}'_j) - 1}{\epsilon_j(\mathbf{r}'_j) + 2} \frac{E'_{j\text{eff}}(\mathbf{r}'_j, t - R'_j/c)}{R'_j} dV'_j, \quad (1)$$

где $E_I(\mathbf{r}, t) = E_{0I} \exp(i\mathbf{k}_0 \mathbf{r} - i\omega t)$ – внешняя волна в точке наблюдения с радиусом-вектором \mathbf{r} ; первый интеграл определяет отклик подложки с поляризацией P , пропорциональной амплитуде падающего на поверхность среды поля; $R = |\mathbf{r} - \mathbf{r}'|$ – расстояние от точки интегрирования с радиусом-вектором \mathbf{r}' , расположенной внутри среды, до точки наблюдения; V – объем среды; c – скорость света в вакууме; аргумент $(t - R/c)$ характеризует запаздывание соответствующей величины. Второй интеграл (точнее, сумма интегралов) определяет поле, создаваемое слоем из N взаимодействующих с ним сферических наночастиц,

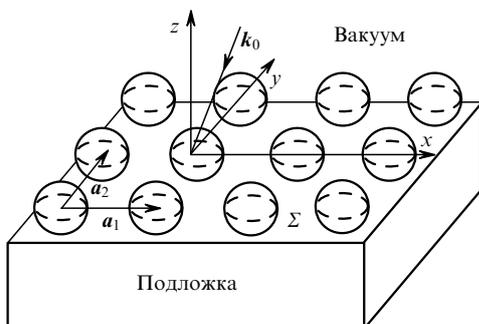


Рис. 1. Геометрия системы. Внешняя волна с волновым вектором k_0 падает из вакуума на поверхность среды Σ , на которой расположен упорядоченный слой наночастиц.

имеющих комплексную диэлектрическую проницаемость $\epsilon_j(\mathbf{r})$ и объем V_j , при этом $R_j = |\mathbf{r} - \mathbf{r}'_j|$; \mathbf{r}'_j – радиус-вектор точки интегрирования внутри j -й наночастицы. Эффективное поле $E'_{j\text{eff}}$, фигурирующее в (1), отличается от падающей плоской волны E_I и представляет собой волну, действующую на каждую точку внутри j -й наночастицы с учетом переизлученных наночастицами и подложкой полей. При этом, согласно [20, 22], $E'_{j\text{eff}}$ имеет две составляющие: внешнюю, или действующую со стороны окружения (подложка и другие частицы монослоя), и внутреннюю, определяющую взаимодействие атомов внутри самой наночастицы и отвечающую за формирование диэлектрической проницаемости среды. Учет внутреннего поля приводит к разделению уравнения (1) на локальное и нелокальное, что детально описано в [20]; при этом первое сводится к известной формуле Лорентц – Лоренца, определяющей взаимосвязь диэлектрической проницаемости частицы с поляризуемостью и концентрацией составляющих ее атомов. Поставленная граничная задача сводится, таким образом, к решению нелокальных уравнений, а именно – к поиску полей $E_{j\text{eff}}$, действующих на наночастицы со стороны окружения.

Рассмотрим в целях упрощения слой из одинаковых однородных нанокластеров ($\epsilon = \epsilon_j$, $a = a_j$ ($j = 1, \dots, N$)) и воспользуемся приближением длинных волн, которое задается следующими условиями:

$$k_0 a, k_0 a \text{Re} n, k_0 a \text{Im} n \ll 1, \quad (2)$$

где k_0 – волновой вектор падающей волны; a и $n = \sqrt{\epsilon}$ – радиус и показатель преломления сферического кластера соответственно. При выполнении этих условий напряженности E_I и $E_{j\text{eff}}$ можно считать постоянными по всему объему кластера и равными соответствующим значениям в его центре.

Таким образом, помещая точку наблюдения и начало координат в центр i -й частицы, запишем нелокальную часть уравнения (1) в следующем виде:

$$E_{i\text{eff}} = E_I(0, t) + \frac{3}{4\pi} \frac{\epsilon - 1}{\epsilon + 2} \times \sum_{j=1, j \neq i}^N \int_{V_j} \text{rot rot} \frac{E_{j\text{eff}}(\mathbf{r}'_j, t - |\mathbf{r}'_j|/c)}{|\mathbf{r}'_j|} dV'_j + (\hat{G} E_m)_{(t-|A|/c)}. \quad (3)$$

Второй член в правой части уравнения (3) представляет собой суперпозицию полей, создаваемых наночастицами слоя в центре i -й частицы. Третье слагаемое определяет полное поле (с учетом вклада от монослоя частиц), отраженное от поверхности подложки, где \hat{G} – коэффициент отражения; E_m – падающее на подложку эффективное поле; аргумент $(t - |A|/c)$ характеризует запаздывание на величину $|A|/c$, представляющую собой время прохождения волной расстояния от плоскости, проходящей через центры наночастиц, до поверхности подложки, причем в нашем случае $A = (0, 0, -a)$. Учет поляризующего воздействия слоя самого на себя посредством отражения создаваемого слоем поля от поверхности подложки является принципиально важным фактором, пренебрежение которым приводит к весьма существенным отклонениям от точного решения. Выражение для E_m можно получить из нелокальной части уравнения (1), записав его для точки наблюдения на поверхности подложки:

$$\mathbf{E}_m = \mathbf{E}_I(\mathbf{A}, t) + \frac{3}{4\pi} \frac{\varepsilon - 1}{\varepsilon + 2} \times \sum_{j=1}^N \int_{V_j} \text{rotrot} \frac{\mathbf{E}_{j\text{eff}}(\mathbf{r}'_j, t - |\mathbf{A} - \mathbf{r}'_j|/c)}{|\mathbf{A} - \mathbf{r}'_j|} dV'_j. \quad (4)$$

Выражения (3) и (4) являются самосогласованной системой интегральных уравнений, решение которой задает напряженность эффективного электрического поля на частицах монослоя. Однако вычисление коэффициента отражения \hat{G} в общем виде представляет собой достаточно сложную задачу [23]. В частности, применение стандартной процедуры, основанной на интегральной форме теоремы погашения [20], для взятия интеграла по среде в (1) становится невозможным из-за неоднородности поля, созданного наночастицами в приповерхностном слое подложки [9]. Фактически решение в этом случае сводится к использованию упомянутого выше метода связанных диполей, требующего сугубо численных расчетов. С другой стороны, как показано нами в [19], коэффициент отражения \hat{G} неоднородного поля может быть приближенно заменен тензором, построенным с помощью френелевских коэффициентов отражения для плоской волны. В оптическом диапазоне данное приближение применимо в случае, если характерные значения геометрических параметров метаслоя (период решетки, размер частиц) не превышают нескольких десятков нанометров при умеренном коэффициенте поглощения материала частиц, что соответствует условиям (2). Таким образом, тензор \hat{G} имеет следующий вид:

$$\hat{G} = \begin{pmatrix} r_{\perp} \sin^2 \varphi - r_{\parallel} \cos^2 \varphi & -(r_{\perp} + r_{\parallel}) \sin \varphi \cos \varphi & 0 \\ -(r_{\perp} + r_{\parallel}) \sin \varphi \cos \varphi & r_{\perp} \cos^2 \varphi - r_{\parallel} \sin^2 \varphi & 0 \\ 0 & 0 & r_{\parallel} \end{pmatrix},$$

где r_{\perp} , r_{\parallel} – френелевские коэффициенты отражения для перпендикулярной и параллельной плоскости падения компонент электрического вектора [20]; φ – угол между плоскостью падения волны и координатной осью x .

3. Оптические поля внутри наноструктурированного слоя

Рассмотрим поле, создаваемое расположенной в вакууме j -й наночастицей, в некоторой точке наблюдения с радиусом-вектором \mathbf{R} вне ее объема. Интеграл, отвечающий соответствующей напряженности в (1), в приближении длинных волн может быть легко вычислен методом Эвальда – Озеена [20], что было неоднократно проделано нами ранее [11, 12, 24]. В результате получим соотношения

$$\mathbf{E}_{j\text{sca}}(\mathbf{R}) = \alpha_p \hat{f}_j(\mathbf{R}) \mathbf{E}_{j\text{eff}} \quad (5)$$

(где $\alpha_p = a^3(\varepsilon - 1)/(\varepsilon + 2)$), в котором тензор $\hat{f}_j(\mathbf{R})$ имеет следующие компоненты, отвечающие параллельной и перпендикулярной поляризациям внешнего поля по отношению к \mathbf{R} :

$$f_j^p(\mathbf{R}) = \exp(ik_0 R) \left(\frac{2}{R^3} - \frac{2ik_0}{R^2} \right), \quad (6)$$

$$f_j^s(\mathbf{R}) = \exp(ik_0 R) \left(-\frac{1}{R^3} + \frac{ik_0}{R^2} + \frac{k_0^2}{R} \right).$$

Согласно выражениям (5), (6), рассеянное наночастицей поле в точности соответствует полю, создаваемому диполем с некоторой поляризуемостью α_p , расположенным в центре этой частицы [20, 22]. Очевидно, что если окружающая частицу среда не является вакуумом, диэлектрическая проницаемость ε в (5) есть относительная, а не абсолютная величина.

Используем принцип параллельной трансляционной симметрии [25, 26], согласно которому напряженность поля, падающего на наночастицы слоя (будь то внешняя волна или волна, отраженная от поверхности подложки) удовлетворяет следующему условию:

$$\mathbf{E}_{\text{inc}}(\mathbf{r}_j) = \mathbf{E}_{\text{inc}}(0) \exp(i\mathbf{q}\mathbf{r}_j). \quad (7)$$

Здесь \mathbf{r}_j – радиус-вектор центра j -й наночастицы, а вектор \mathbf{q} имеет компоненты $(q_x, q_y, 0)$, где $q_x = k_{0x} = -k_0 \sin \theta_I \times \cos \varphi$; $q_y = k_{0y} = -k_0 \sin \theta_I \sin \varphi$; θ_I – угол падения. Таким образом, поскольку кластеры одинаковы, амплитуды напряженностей $\mathbf{E}_{j\text{eff}} = \mathbf{E}_{i\text{eff}} = \mathbf{E}_{\text{eff}}$, а фазовый сдвиг определяется соотношением (7). С учетом (5)–(7) входящие в уравнения (3), (4) интегральные слагаемые преобразуются к следующим решеточным суммам:

$$\frac{3}{4\pi} \frac{\varepsilon - 1}{\varepsilon + 2} \sum_{j=1}^N \int_{V_j} \text{rotrot} \frac{\mathbf{E}_{\text{eff}}(\mathbf{r}'_j, t - R'_j/c)}{R'_j} dV'_j = \alpha_p \mathbf{E}_{\text{eff}} \sum_{j=1}^N \hat{f}_j(|\mathbf{r} - \mathbf{r}_j|) \exp(i\mathbf{q}\mathbf{r}_j). \quad (8)$$

Таким образом, рассматриваемая система интегральных уравнений (3), (4) сводится к следующему линейному алгебраическому уравнению для поля, действующего на кластер:

$$\mathbf{E}_{\text{eff}} = \mathbf{E}_I(0) + \alpha_p \mathbf{E}_{\text{eff}} \hat{A}_p + \hat{G} [\mathbf{E}_I(0) \exp(2i\mathbf{k}_0 \mathbf{A}) + (\alpha_p \mathbf{E}_{\text{eff}} \hat{C}_p^-(2\mathbf{A}))], \quad (9)$$

где выражение в квадратных скобках равно $(\mathbf{E}_m)_{(t-|\mathbf{A}|/c)}$ с учетом того, что волна, отраженная от подложки, запаздывает по сравнению с падающей на слой волной как на пути от плоскости, проходящей через центры наночастиц, до поверхности подстилающей среды, так и после отражения, на пути от поверхности подложки до указанной плоскости. В (9) введены следующие обозначения:

$$\hat{A}_p = \sum_{j=1, j \neq i}^N \hat{f}_j(|\mathbf{r}_j|) \exp(i\mathbf{q}\mathbf{r}_j), \quad (10)$$

– решеточная сумма, определяющая поле, создаваемое в месте расположения i -й частицы остальными частицами слоя;

$$\hat{C}_p^-(2\mathbf{A}) = \left(\sum_{j=1}^N \hat{f}_j(|\mathbf{A} - \mathbf{r}_j|) \exp(i\mathbf{q}\mathbf{r}_j) \right)_{(t-|\mathbf{A}|/c)} \quad (11)$$

– решеточная сумма, описывающая поле, излучаемое слоем в направлении подложки (индекс «←» означает, что волна распространяется в отрицательном направлении относительно оси z). Результаты вычисления решеточных сумм вида (10) и (11) приведены в Приложении.

Решив уравнение (9) относительно эффективного поля, действующего на частицу монослоя, получим

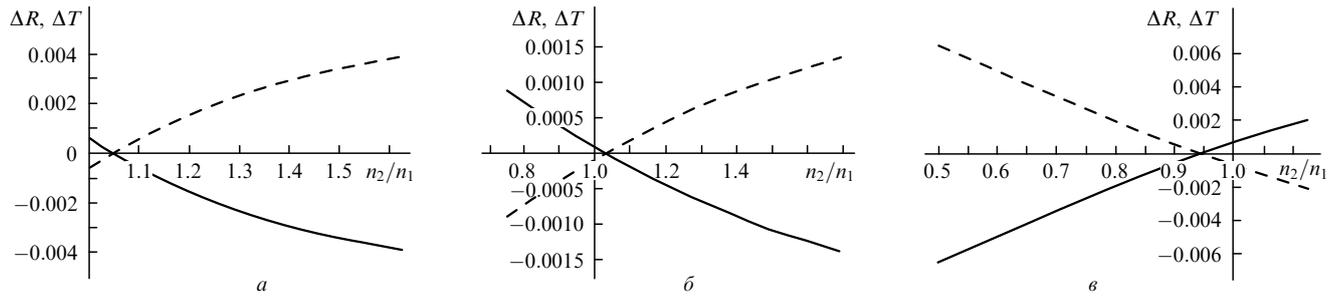


Рис.2. Отличие значений отражательной ($\Delta R = R - R_F$, сплошные кривые) и пропускательной ($\Delta T = T - T_F$, штриховые кривые) способности системы монослой сферических наночастиц – подложка от френелевских, рассчитанных для нормального падения света. Сферы радиусом $a = 10$ нм имеют показатель преломления $n = 1.5$ и расположены в виде квадратной решетки; расстояние между центрами частиц 30 нм. Абсолютный показатель преломления среды, в которой расположен монослой, $n_1 = 1$ (а), 1.33 (б) и 2 (в).

$$E_{\text{eff}} = \frac{1 + \hat{G} \exp(2i\mathbf{k}_0\mathbf{A})}{1 - \alpha_p \hat{A}_p - \hat{G}(\alpha_p \hat{C}_p^-(2\mathbf{A}))} E_I(0). \quad (12)$$

Воспользуемся формализмом эффективной поляризуемости, позволяющим оперировать напряженностью внешнего поля, отвлекаясь от параметров структуры. Используя соотношение

$$\mathbf{d}_p = \alpha_p E_{\text{eff}} = \hat{\alpha}_{p \text{ eff}} E_I, \quad (13)$$

где \mathbf{d}_p – дипольный момент нанокластера, получим следующее выражение для эффективной поляризуемости наночастицы:

$$\hat{\alpha}_{p \text{ eff}} = \alpha_p \frac{1 + \hat{G} \exp(2i\mathbf{k}_0\mathbf{A})}{1 - \alpha_p \hat{A}_p - \hat{G}(\alpha_p \hat{C}_p^-(2\mathbf{A}))}. \quad (14)$$

4. Поле отраженной волны в волновой зоне. Влияние монослоя частиц на энергетический коэффициент отражения

Запишем выражение для отраженной от системы монослой – подложка волны в некоторой точке наблюдения с радиусом-вектором \mathbf{p} в следующем виде:

$$E_{\text{refl}}(\mathbf{p}) = \{ \hat{G} \exp[i\mathbf{k}_0\mathbf{A} + i\mathbf{k}_{0 \text{ refl}}(-\mathbf{A} + \mathbf{p})] + \hat{\alpha}_{p \text{ eff}} [\hat{G} \hat{C}_p^-(2\mathbf{A} - \mathbf{p}) + \hat{C}_p^+(\mathbf{p})] \} E_I, \quad (15)$$

где использование $-\mathbf{p}$ в $\hat{C}_p^-(2\mathbf{A} - \mathbf{p})$ позволяет избежать разбиения пути, пройденного волной, на два участка (в отрицательном направлении оси z от слоя до поверхности подложки и затем в положительном – от подложки до точки \mathbf{p}) и заменить его полным расстоянием, отложенным в отрицательном направлении оси z ; $\mathbf{k}_{0 \text{ refl}} = (k_{0x}, k_{0y}, -k_{0z})$ – волновой вектор отраженной волны.

Из выражения (15) следует, что амплитуда отраженной волны определяется сложением трех величин. Одна из них, представленная в (15) первым слагаемым, соответствует френелевскому отражению от плоской поверхности подложки в отсутствие монослоя сферических частиц. Наличие других слагаемых обусловлено поляризацией наносфер, электродинамически взаимодействующих между собой и с подложкой: $\alpha_p \text{ eff} \hat{C}_p^+(\mathbf{p}) E_I$ отвечает за излучение монослоя непосредственно в направлении отраженной волны (в положительном направлении оси z), $\alpha_p \text{ eff} \hat{G} \hat{C}_p^-(2\mathbf{A} - \mathbf{p}) E_I$ соответствует излучению, сформированному монослоем частиц в глубь подложки и отразив-

шемуся от ее поверхности. Фазовые множители этих слагаемых существенно зависят от материальных и геометрических параметров структуры монослой – подложка, вследствие чего интерференция соответствующих волн в точке наблюдения может приводить к увеличению либо уменьшению коэффициента отражения по сравнению с френелевским.

Из представленных на рис.2 зависимостей, полученных точным электродинамическим расчетом методом конечных элементов [21], видно, что наличие монослоя у границы раздела сред приводит к характерному для интерференционных эффектов перераспределению энергии световой волны: уменьшение отражения всегда сопровождается увеличением доли энергии прошедшей в подложку волны, и наоборот. Для прозрачных сред интерференция может принимать деструктивный характер только при выполнении условия $(n - n_1)(n_2 - n_1) > 0$, где n_1, n_2 – абсолютные показатели преломления граничащих полубесконечных сред. От соотношения между оптическими плотностями материала сферических частиц и окружающей их среды зависит знак поляризуемости частиц α_p и, как следствие, величина фазового сдвига волн, сформированных монослоем частиц. Таким образом, изменение знака разности $(n - n_1)$ приводит к смене характера интерференции волн, отраженных всей структурой, в чем можно убедиться из сравнения зависимостей, представленных на рис.2,а, б и рис.2,в.

Таким образом, характер интерференции волн, отраженных от слоя и подложки, сильно зависит от соотношения оптических постоянных окружающей среды и подложки, а также от параметров монослоя, что позволяет изменять результирующую отражательную способность в достаточно широких пределах. Явление уменьшения общего отражения от системы за счет нанесения нанопокртия также наблюдалось нами ранее [4, 19].

5. Условие полного погашения отражения

Интересным представляется получение условий, при которых отражение от подложки погашается полностью (условия идеального просветления). Полагая амплитуду отраженной волны в (15) равной нулю, получим следующее соотношение между параметрами просветляемой подложки и наноструктурированного покрытия:

$$\hat{G} = \frac{\hat{M} + \hat{P} + [(\hat{M} + \hat{P})^2 - \hat{C}_p^+(\mathbf{p}) \hat{K}^2]^{1/2}}{\hat{K}}, \quad (16)$$

где

$$\begin{aligned} \hat{K} &= 2\alpha_p \{ \hat{C}_p^-(2\mathbf{A}) \exp[i\mathbf{k}_0\mathbf{A} + i\mathbf{k}_{0\text{refl}}(-\mathbf{A} + \mathbf{p})] \\ &- \hat{C}_p^-(2\mathbf{A} - \mathbf{p}) \exp[2i\mathbf{k}_0\mathbf{A}] \}; \\ \hat{M} &= \exp[i\mathbf{k}_0\mathbf{A} + i\mathbf{k}_{0\text{refl}}(-\mathbf{A} + \mathbf{p})] (1 - \alpha_p \hat{A}_p); \\ \hat{P} &= \alpha_p [\hat{C}_p^-(2\mathbf{A} - \mathbf{p}) - \hat{C}_p^+(\mathbf{p}) \exp[2i\mathbf{k}_0\mathbf{A}]]. \end{aligned}$$

Заметим, что левая часть выражения (16) характеризует подложку, а правая полностью определяется материальными и геометрическими параметрами монослоя наночастиц.

В некоторых случаях выражение (16) существенно упрощается. Будем считать, что внешняя волна падает на систему по нормали, а также пренебрежем вкладом затухающих волн в тензорах \hat{C}_p^\pm (см. в Приложении (П1)), поскольку, как показано нами в работе [19], в рассматриваемом интервале материальных и геометрических параметров слоя их амплитуда много меньше амплитуды нулевой (незатухающей) гармоники. В результате введения указанных приближений условие полного погашения отражения (16) примет следующий вид:

$$\hat{G} = i \frac{2\pi k_0}{|\mathbf{a}_1 \times \mathbf{a}_2|} \frac{\alpha_p}{1 - \alpha_p \hat{A}} \exp(-i2k_0\mathbf{A}). \quad (17)$$

На рис.3 представлены спектральные зависимости отражательной способности рассматриваемой системы, полученные точным электродинамическим расчетом методом конечных элементов [21]. При этом показатель преломления подложки выбирался таким образом, чтобы удовлетворить условию (17) на длинах волн 550 нм (рис.3,а) и 460 нм (рис.3,б), а параметры монослоя задавались априори. В качестве материала наночастиц на рис.3,а выбрана абстрактная среда с показателем преломления $n = 1.8$, а на рис.3,б – кремний, дисперсионная зависимость оптических постоянных которого взята из [27].

Следует отметить, что в минимумах коэффициента отражения на рис.3 нулевое значение не достигается (однако отражательная способность системы в этих условиях в несколько сотен раз меньше отражательной способности чистой поверхности подложки), и эти минимумы несколько смещены относительно предполагаемых минимумов на длинах волн 550 и 460 нм, что связано с расхождением аналитического (при помощи которого получено условие (17)) и точного решений [19]. В связи с этим в случае больших ($a \geq 20$ нм [19]) наночастиц также

возникает необходимость некоторой коррекции показателя преломления подложки, определяемого из формулы (17), при помощи точного решения. В рамках настоящей работы коррекция проводилась перебором значений соответствующего параметра. Таким образом, аналитическое значение показателя преломления подложки n_2 для рис.3,б составляет $1.1 + 0.36i$, тогда как просветление наблюдается при $1.23 + 0.33i$. Это обусловлено нарушением условия (2), в результате чего частица перестает вести себя как сосредоточенный в ее центре диполь и возникает необходимость учета мультипольных членов в разложении рассеянного поля.

Подчеркнем также, что «погашение» отражения оказывается существенным (более 10 раз) в достаточно широком диапазоне длин волн: от 460 до 800 нм на рис.3,а и от 400 до 600 нм на рис.3,б. При этом поглощение излучения слоем на рис.3,а отсутствует, а на рис.3,б составляет в видимом диапазоне в среднем 0.13 %.

Обнаруженный эффект просветления среды за счет нанесения на ее поверхность наноструктурированной пленки представляется достаточно перспективным для создания просветляющих покрытий. Действительно, создание тонкопленочных многослойных интерференционных покрытий для некоторых материалов осложнено частотной дисперсией показателя преломления просветляемой среды либо необходимостью использования пленки с оптическими постоянными, недостижимыми для массивных веществ. Оптические характеристики покрытия из наночастиц могут быть существенно изменены путем варьирования только внутренних геометрических параметров, что позволяет достичь эффекта просветления и для указанных «сложных» случаев. К примеру, если показатель преломления подложки фиксирован, изменение радиуса частиц на рис.3 на 1 % приводит к смещению минимума отражения по шкале длин волн приблизительно на 27 нм (рис.3,а) и 23 нм (рис.3,б). При этом уменьшение размера частиц вызывает смещение минимума в коротковолновую область спектра, и наоборот. Варьирование постоянной решетки также изменяет положение области полного погашения отражения, причем при уплотнении решетки указанная область смещается в сторону больших длин волн. В случае, если фиксированы не оптические постоянные подложки, а длина волны, на которой необходимо достичь просветления, условие (17) выполняется при различных параметрах монослоя для различных подложек. При этом имеет место следующая взаимосвязь: чем сильнее отражает подложка, тем большую эффективную оптическую плотность должен иметь

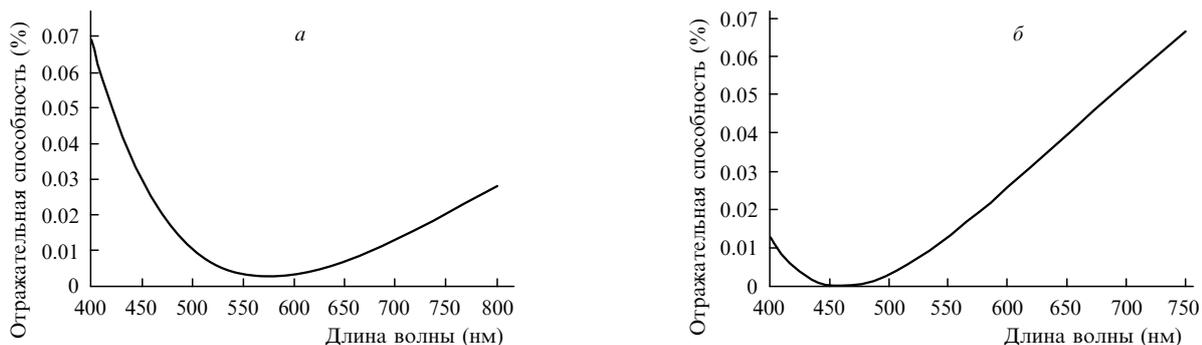


Рис.3. Спектральные зависимости отражательной способности системы монослоя сферических наночастиц – подложка при $a = 15$ нм, $n = 1.8$, $n_2 = 1.03 + 0.11i$ (а) и $a = 20$ нм, $n = n(\omega)$ (для кремния), $n_2 = 1.23 + 0.33i$ (б). Внешняя волна падает на систему по нормали ($\theta_l = 0$) и поляризована вдоль оси y , частицы образуют прямоугольную решетку с постоянными $|\mathbf{a}_{1,2}| = 3a$.

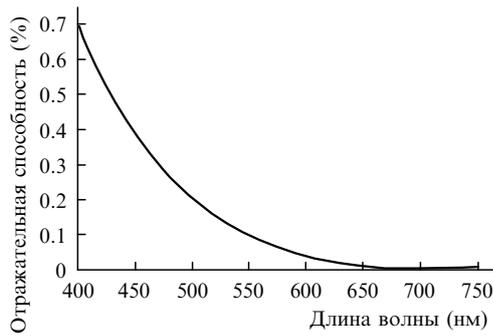


Рис.4. Спектральная зависимость отражательной способности системы вставленных одна в другую квадратных решеток из сфер с размерами 10 и 5 нм на поверхности полубесконечной среды. Периоды подрешеток одинаковы и равны 30 нм, показатели преломления сфер и подложки составляют соответственно $1.5 + 3i$ и $0.96 + 0.22i$, параметры падающей волны те же, что на рис.3.

метаслой для ее просветления (более плотная упаковка, крупнее частицы, большую оптическую плотность имеет материал частиц). Указанный вывод очевиден, поскольку в этом случае волна, созданная монослоем, имеет большую амплитуду и, соответственно, интерференционно погашает более сильное отражение от подложки.

Еще одним способом существенной перестройки оптических свойств системы монослой – подложка является изменение геометрической структуры решетки из наночастиц – создание анизотропных метаслоев с упаковкой, отличной от квадратной, а также использование вложенных подрешеток. К примеру, на рис.4 показана спектральная зависимость отражательной способности среды с нанесенной на ее поверхность сложной решеткой, состоящей из двух вложенных подрешеток, частицы которых различаются по размерам. Очевидно, что таким образом можно существенно смещать минимум отражения по шкале длин волн.

6. Заключение

В настоящей работе рассмотрено электродинамическое взаимодействие одиночного слоя из упорядоченно расположенных сферических наночастиц с полубесконечной подложкой. Показано, что в данной системе возможна реализация как конструктивной, так и деструктивной интерференции полей, отраженных от монослоя и поверхности подложки, что проявляется в увеличении либо уменьшении отражательной способности системы в целом. Получены и исследованы условия полного просветления подложки, а также определены факторы, влияющие на положение минимума отражения по шкале длин волн. Отметим, что эффект погашения френелевского отражения от границы раздела двух сред за счет использования наноструктурированного слоя из углеродных, SiO₂- или TiO₂-трубок ранее обнаруживался экспериментально в работах [28, 29].

В качестве одного из возможных применений обнаруженного явления следует отметить создание просветляющих покрытий для существующих в настоящее время искусственных сред с показателем преломления, близким к единице [7]. Согласно общей теории конструирования просветляющих покрытий [20], показатель преломления просветляющей пленки в данном случае должен быть еще ближе к вакуумному, что, очевидно, не позволяет использовать для этих целей какой-либо природный мате-

риал. Использование же сильно разреженной структуры с контролируемыми оптическими характеристиками, которой и является монослой наночастиц, позволяет существенно ослабить или даже устранить отражение от подобного материала, что, в свою очередь, открывает путь к конструированию абсолютно прозрачных материалов.

Приложение

Решеточные суммы

Для вычисления решеточных сумм (10), (11) воспользуемся способом, предложенным Эвальдом и успешно примененным в ряде работ [25, 26, 30]. Рассмотрим вначале случай, когда точка наблюдения находится вне слоя. Учитывая, что функция, описывающая поле диполей, является периодической с периодом, равным периоду решетки, она может быть разложена в ряд Фурье по векторам обратной решетки. Поскольку вывод указанных выражений можно найти в приведенных выше ссылках, запишем непосредственно результат:

$$\hat{C}_p(\mathbf{r} - \mathbf{r}_j) = - \sum_{p, q = -\infty}^{\infty} \frac{2\pi i}{|\mathbf{a}_1 \times \mathbf{a}_1|} [\mathbf{k}_{pq}(\mathbf{k}_{pq} \times \mathbf{n}_0)] \frac{\exp(i\mathbf{k}_{pq}\mathbf{r})}{\kappa_{pq}}, \quad (\text{П1})$$

где $\mathbf{n}_0 = \mathbf{E}_I/|\mathbf{E}_I|$; $\kappa_{pq} = [k_0^2 - (\mathbf{q} + \mathbf{g}_{pq}^p)^2]^{1/2}$; $\mathbf{g}_{pq}^p = p\mathbf{g}_1 + q\mathbf{g}_2$;

$$\mathbf{k}_{pq} = \begin{cases} (\mathbf{q} + \mathbf{g}_{pq}^p, \kappa_{pq}), & z > 0, \\ (\mathbf{q} + \mathbf{g}_{pq}^p, -\kappa_{pq}), & z < 0. \end{cases} \quad (\text{П2})$$

Векторы обратной решетки

$$\mathbf{g}_1 = 2\pi \frac{\mathbf{a}_2 \times \mathbf{n}}{|\mathbf{a}_1 \times \mathbf{a}_2|}, \quad \mathbf{g}_2 = 2\pi \frac{\mathbf{n} \times \mathbf{a}_1}{|\mathbf{a}_1 \times \mathbf{a}_2|}, \quad (\text{П3})$$

где $\mathbf{a}_1 = (\alpha, 0, 0)$, $\mathbf{a}_2 = (\beta, \gamma, 0)$ – векторы трансляции прямой решетки, выбранные из соображения минимальности их длины, а вектор $\mathbf{n} = (0, 0, 1)$ перпендикулярен поверхности монослоя.

Выражение (П1) представляет собой разложение поля, создаваемого монослоем наночастиц, на плоскую гармоническую волну ($p = q = 0$) и ряд экспоненциально затухающих волн, возникающих при $|\mathbf{q} + \mathbf{g}_{pq}^p| > k_0$, когда κ_{pq} являются мнимыми.

Вычислим теперь решеточную сумму (10) для точек наблюдения внутри метапокрытия. Следуя методу Эвальда [25], запишем следующее выражение при $z = 0$:

$$\hat{A}_p = \hat{l}(\mathbf{k}_0)\mathbf{n}_0 \exp(i\mathbf{q}\mathbf{r}_j). \quad (\text{П4})$$

Тензор \hat{l} является симметричным с компонентами l_{xz} , l_{yz} , l_{zx} , l_{zy} , равными нулю, и имеет следующий вид:

$$l^{\mu\nu}(\mathbf{k}_0) = c^{\mu\nu} - \left[\frac{2}{3} ik_0^3 \text{Erfc}\left(\frac{ik_0}{2F}\right) + \frac{4F}{3\sqrt{\pi}} (k_0^2 - F^2) \exp\left(-\frac{k_0^2}{4F^2}\right) - \frac{2}{3} ik_0^3 \right] \delta^{\mu\nu}. \quad (\text{П5})$$

Здесь содержится дополнительный интеграл вероятностей (Erfc), который быстро стремится к нулю при больших значениях аргумента,

$$c^{\mu\nu} = \frac{i\pi}{|\mathbf{a}_1 \times \mathbf{a}_2|} \sum_{p, q} \left[\frac{k_0^2 \delta^{\mu\nu} - k_{pq\nu} k_{pq\mu}}{\kappa_{pq}} \Delta_{pq}(1 + \tau) + \eta \Sigma_{pq} \right] +$$

$$\begin{aligned}
 & + \frac{1}{2} \sum_{n,m} \frac{\exp(i\mathbf{k}_0 \mathbf{a}_{nm})}{a_{nm}^3} \{ \Gamma_{nm}^{(1)} [\delta^{\mu\nu} \Gamma_{nm}^{(2)} + \mathbf{a}_{nm}^\mu \mathbf{a}_{nm}^\nu \Gamma_{nm}^{(3)}] \\
 & + \Gamma_{nm}^{(4)} [-\delta^{\mu\nu} a_{nm} + \mathbf{a}_{nm}^\mu \mathbf{a}_{nm}^\nu \Gamma_{nm}^{(5)}] + \text{компл. сопр.} \}, \quad (\text{П6})
 \end{aligned}$$

где $\mu, \nu = x, y, z$; $\mathbf{a}_{nm} = n\mathbf{a}_1 + m\mathbf{a}_2$; $a_{nm} = |\mathbf{a}_{nm}|$; n, m – целые числа; $\eta = \delta^{\mu z} \delta^{\nu z}$; $\tau = (-1)^{\delta^{\mu z}} (-1)^{\delta^{\nu z}}$;

$$A_{pq} = \text{Erfc}\left(-\frac{ik_{pq}}{2F}\right); \quad \Sigma_{pq} = \frac{i4F}{\sqrt{\pi}} \exp\left(\frac{k_{pq}^2}{4F^2}\right);$$

$$\Gamma_{nm}^{(1)} = \exp(-ik_0 a_{nm}) \text{Erfc}\left(a_{nm} F - \frac{ik_0}{2F}\right); \quad (\text{П7})$$

$$\Gamma_{nm}^{(2)} = -1 - ik_0 a_{nm} + k_0^2 a_{nm}^2; \quad \Gamma_{nm}^{(3)} = -k_0^2 + \frac{3ik_0}{a_{nm}} + \frac{3}{a_{nm}^2};$$

$$\Gamma_{nm}^{(4)} = \frac{2F}{\sqrt{\pi}} \exp\left(-F^2 a_{nm}^2 + \frac{k_0^2}{4F^2}\right);$$

$$\Gamma_{nm}^{(5)} = \frac{3}{a_{nm}} + 2F^2 a_{nm}; \quad F = \left(\frac{\pi}{|\mathbf{a}_1 \times \mathbf{a}_2|}\right)^{1/2}.$$

Сходимость сумм в (П5) определяется параметром F с размерностью обратной длины. Этот параметр не имеет физического смысла и должен быть действительной положительной величиной. Подставляя F в (П7), можно определить максимальные значения индексов m, n и p, q , необходимые для расчета решеточных сумм с заданной точностью. Учитывая, что при больших значениях аргумента $\text{Erfc}(x) = \exp(-x^2)/(x\sqrt{\pi})$, получим следующее условие:

$$\exp\left(-\frac{\pi a_{nm}^2}{|\mathbf{a}_1 \times \mathbf{a}_2|}\right) \approx \xi, \quad (\text{П8})$$

где ξ – малая величина, определяющая точность вычислений. Точный численный расчет для квадратной решетки показывает, что изменение индексов m, n и p, q от -2 до 2 обеспечивает относительную точность вычисления решеточных сумм около $10^{-4}\%$, что хорошо согласуется с оценкой (П8).

1. Shalaev V.M., Wenshan Cai, Uday K. Chettiar, et al. *Opt. Lett.*, **30**, 3356 (2005).
2. Smith D.R., Pendry J.B. *J. Opt. Soc. Am. B*, **23**, 391 (2006).
3. Agranovich V.M., Shen Y.R., Baughman R.H., et al. *Phys. Rev. B*, **69**, 165112 (2004).
4. Гадомский О.Н., Шалин А.С. *ЖЭТФ*, **132**, 870 (2007).
5. Grigorenko A.N., Geim A.K., Gleason H.F., et al. *Nature*, **438**, 335 (2005).
6. Zhang S., Fan W., Panoiu N.C., et al. *Phys. Rev. Lett.*, **95**, 137404 (2005).
7. Xi J.-Q., Kim Jong Kyu, Schubert E.F., Ye Dexian, Lu T.-M., Lin Shawn-Yu, Juneja Jasbir S. *Opt. Lett.*, **31**, 601 (2006).
8. Mishchenko M.I., Travis L.D., Lasis A.A. *Scattering, Absorption and Emission of Light by Small Particles* (Cambridge: Cambridge University Press, 2002).
9. Haarmans M.T., Bedeaux D. *Thin Sol. Films*, **224**, 117 (1993).
10. Mie G. *Ann. Phys.*, **25**, 377 (1908).
11. Шалин А.С. *ЖПС*, **73**, 641 (2006).
12. Шалин А.С. *Изв. вузов. Сер. Физика*, **49**, 3 (2006).
13. Arfken G.B., Weber H.J. *Mathematical Methods for Physicists* (New York: Acad. Press, 1995).
14. Liu Z., Boltasseva A., Pedersen R.H., Bakker R., Kildishev A.V., Drachev V.P., Shalaev V.M. *Metamaterials*, **2**, 45 (2008).
15. Taflov A., Hagness S.C. *Computational Electrodynamics: The Finite-difference Time-Domain Method* (Boston: Artech House, 2000).
16. Prather D.W., Shi S. *J. Opt. Soc. Am. A*, **16**, 1131 (1999).
17. Chaumet P.C., Rahmani A., Bryant G.W. *Phys. Rev. B*, **67**, 165404 (2003).
18. Curry A., Nusz G., Chilkoti A., Wax A. *Opt. Express*, **13**, 2668 (2005).
19. Шалин А.С., Мойсеев С.Г. *Оптика и спектроскопия*, **106**, 1029 (2009).
20. Борн М., Вольф Э. *Основы оптики* (М.: Наука, 1973).
21. COMSOL Multiphysics 3.4, COMSOL AB, Stockholm, Sweden; <http://www.comsol.com/products/multiphysics/>
22. Борн К., Хафмен Д. *Поглощение и рассеяние света малыми частицами* (М.: Мир, 1986).
23. Evlyukhin A.B., Bozhevolnyi S.I. *Phys. Rev. B*, **71**, 134304 (2005).
24. Гадомский О.Н., Шалин А.С. *Физика металлов и металловедение*, **101**, 462 (2006).
25. Poppe G.P.M., Wijers C.M.J., Silfhout A. *Phys. Rev. B*, **44**, 7917 (1991).
26. Wijers C.M.J., Poppe G.P.M. *Phys. Rev. B*, **46**, 7605 (1992).
27. Palik E.D. *Handbook of Optical Constants of Solids* (New York: Acad. Press, 1985).
28. Garcia-Vidal F.J. *Nature Photon.*, **2**, 215 (2008).
29. Xi J.-Q., Schubert M.F., Kim Jong Kyu, et al. *Nature Photon.*, **1**, 176 (2007).
30. Sukhov S.V., Krutitsky K.V. *Phys. Rev. B*, **65**, 115407 (2002).