Физика низких температур, 1995, т. 21, № 3, с. 336–339

Краткие сообщения

УДК 539.292

Отражение ИК излучения от сильно поглощающего слоя малых металлических частиц

А. Я. Бланк, А. Я. Шаршанов

Радиоастрономический институт НАН Украины, Украина, 310002, г. Харьков, ул. Краснознаменная, 4

Статья поступила в редакцию 31 октября 1994 г.

Вычислен коэффициент отражения ИК излучения от тонкого (толщиной порядка λ — длины волны в вакууме) слоя малых металлических частиц. Ранее было показано, что такой слой с малой плотностью частиц практически полностью поглощает все падающее на него излучение в широком ИК диапазоне длин волн. Эффект связан с проникновением переменного поля в квазиметаллическую высокодисперсную среду и обусловлен резонансным возбуждением поверхностных электромагнитных волн в несферических металлических частицах. Отражение падающего излучения от слоя оказывается малым по параметру σ_s/σ_a, где σ_s и σ_a — соответственно сечения рассеяния и поглощения отдельной частицей. Коэффициент отражения по порядку величины равен $(V/\lambda^3)|\varepsilon|$, где V — объем частицы; ε — диэлектрическая проницаемость металла. Для характерной экспериментальной ситуации отражение составляет не более нескольких процентов падающего излучения.

Обчислено коефіцієнт відбиття ІЧ випромінювання від тонкого (товщиною близько λ — довжини хвилі у вакуумі) шару малих металевих частинок. Раніше було показано, що такий шар з малою густиною частинок практично повністю поглинає усе випромінювання в широкому ІЧ діапазоні довжин хвиль. Ефект пов'язано з проникненням змінного поля в квазіметалеве високодисперсне середовище і зумовлено резонансним збудженням поверхневих електромагнітних хвиль в металевих несферичних частинках. Відбиття падаючого випромінювання від шару виявляється малим по параметру σ_s/σ_a, де σ_s та σ_a — відповідно перерізи розсіяння та відбиття частинкою. Коефіцієнт відбиття дорівнює завбільшки $(V/\lambda^3)|\varepsilon|$, де V — об'єм частинки; ε — діелектрична проникність металу. Для типової експериментальної ситуації відбиття складає кілька відсотків падаючого випромінювання.

Как известно, высокая поглощательная способность металла приводит к практически полному отражению электромагнитного излучения от поверхности массивного образца. В результате массивный металл не поглощает излучение. В тонких металлических пленках (толщиной менее глубины скин-слоя) благодаря конкуренции между высокой отражательной способностью сплошного металла и прозрачностью тонкой пленки наблюдается рост поглощения, которое может достигать половины падающего потока, при этом коэффициент отражения падает до одной четверти. Хорошо известен экспериментальный факт чрезвычайно малого (не более нескольких процентов) отражения ИК излучения от тонкого слоя малых металлических частиц — металлической черни, напыляемой на массивную подложку (из диэлектрика либо металла) [1–3]. Одновременно с этим наблюдается практически полное поглощение в слое черни в широком диапазоне длин волн λ (1–20 мкм). Указанные явления широко используются при создании высокоэффективных приемников ИК излучения и неотражающих покрытий. Механизм, приводящий к аномально большому поглощению, согласующемуся с экспериментом, в высокодисперсной квазиметаллической среде, был рассмотрен в ряде работ [4,5]*. Значительный интерес представляет расчет коэффициента отражения излучения от сильно поглощающего слоя малых металлических частиц, чему и посвящена настоящая работа.

Резкое различие поглощающих и отражающих свойств черни и массивного металла либо сплошной пленки не позволяет рассматривать оптические свойства черни в континуальной модели. Представляется очевидным, что малое отражение связано с рассеивающими свойствами отдельной

* К сожалению, авторам ранее не была известна работа Кларо и Фукса [4], в которой были получены близкие по содержанию результаты.

частицы, тогда как большое поглощение по-прежнему обязано металлическому характеру проводимости среды.

В нашей предыдущей работе [5] обсуждалась следующая модель высокодисперсной квазиметаллической среды, приводящая к росту поглощения. В процессе напыления на подложку малых частиц (с характерными размерами порядка 50–100 Å) в результате агрегации возникают протяженные гранулы, непосредственно наблюдаемые в эксперименте. Толщина гранул порядка 0,1 мкм, линейные размеры достигают нескольких микронов. Плотность вещества в гранулах оказывается порядка плотности массивного металла, в то время как сама среда является достаточно рыхлой: объемная доля металла в слое мала и составляет $10^{-1}-10^{-3}$.

Из-за пористой структуры среды переменное поле свободно проникает в пространство между гранулами, а, благодаря малой по сравнению с толщиной скин-слоя толщине гранул, для электрического поля волны реализуется квазистатическая ситуация. Для простоты протяженные гранулы считаем эллипсоидами с малым отношением полуосей. Как известно, статическое поле при поляризации, параллельной наибольшей оси эллипсоида, свободно проникает в гранулу. Таким образом, создаются условия для максимального взаимодействия поля волны с веществом. Наиболее эффективно это взаимодействие осуществляется при резонансном возбуждении собственных мод в гранулах — поверхностных электромагнитных волн. Последние представляют собой аналог дипольных резонансов Ми для сферических частиц. В рассматриваемых протяженных гранулах резонансная частота этой моды равна

$$\omega_f = \omega_p f^{1/2} , \tag{1}$$

где ω_p — плазменная частота металла; f — поляризационный фактор, определяемый формой гранулы. По порядку величины f равен квадрату отношения полуосей эллипсоида ($f \approx (a/b)^2$), для сферической частицы $f = 1/3$, в предельном случае бесконечного цилиндра $f = 0$. Для $f \lesssim 10^{-1}$ резонансная частота попадает в ИК область и одновременное возбуждение поверхностной моды на частицах одинаковой формы приводит к пику поглощения на частоте ω_f.

При совпадении частоты падающей волны с частотой ω_f происходит резкое возрастание величин сечений поглощения и рассеяния отдельной частицей. Так, сечение поглощения, которое в обычной ситуации имеет порядок величины $\sigma_a \sim a^2 b/\lambda \sim a^2$, в резонансе становится порядка

$$\sigma_a \sim \left(a^2 b/\lambda\right) \, \mathrm{Im} \left[\frac{(\varepsilon - 1)}{1 + f(\varepsilon - 1)}\right] \sim a^2 \varepsilon'' ,$$

ε — диэлектрическая проницаемость; ε'' — ее мнимая часть. Такое возрастание сечения поглощения отдельной частицей приводит к резкому уменьшению (в $(\delta/\lambda)^2$ раз, δ — глубина скин-слоя) характерной длины поглощения $l_a = (n\sigma_a)^{-1} \sim l(l/a)^2(\delta/\lambda)^2$ ($l = n^{-1/3}$ — среднее расстояние между частицами, n — их плотность) по сравнению с нерезонансной ситуацией.

Сечение рассеяния при этом, хотя также возрастает в резонансе, остается в $(a/\delta)^2$ раз меньше сечения поглощения. Во столько же раз l_a оказывается меньше длины упругого рассеяния волны.

Таким образом, представляется вероятным, что большая величина поглощения и соответственно малое отражение в рассматриваемой среде обусловлены главным образом поглощающими и рассеивающими свойствами отдельных частиц и не связаны с когерентными эффектами типа квантовой локализации фотонов, интенсивно обсуждаемыми в последнее время (см., например, [6]). В случае локализации фотонов ситуация, как известно, должно быть противоположной.

Будем рассматривать слой сильно поглощающих металлических гранул как систему независимых электрических диполей малой плотности. В этом случае отраженное поле является суперпозицией некогерентных рассеянных полей случайно расположенных частиц.

В электродипольном приближении амплитуда поля, рассеянного произвольной частицей, имеет вид

$$\mathbf{E}_j = k^2 \left[\mathbf{n}_j \, [\mathbf{p}_j \, \mathbf{n}_j]\right] \frac{\exp{(ikr_j)}}{r_j} , \tag{2}$$

где $\mathbf{r}_j$ — вектор, связывающий рассеиватель с точкой наблюдения; $\mathbf{n}_j = \mathbf{r}_j/r_j$; $k = 2\pi/\lambda$ — волновой вектор падающей волны; $\mathbf{p}_j$ — наведенный дипольный момент частицы.

Коэффициент отражения возникает в результате суммирования по всем рассеивателям проекции вектора Пойнтинга на направление отражения:

$$R = \frac{k^4}{|E_0|^2} \sum_j \frac{|\mathbf{p}_{\perp j}|^2 \cos\vartheta_j}{r_j^2} , \tag{3}$$

$\mathbf{p}_{\perp j}$ — составляющая дипольного момента, перпендикулярная вектору $\mathbf{r}_j$; ϑ_j — угол между вектором $\mathbf{r}_j$ и направлением отражения ; E_0 — амплитуда падающей волны.

При получении выражения (3) мы пренебрегли интерференционными слагаемыми, использовав факт случайного расположения рассеивателей.

Переходя к интегрированию в формуле (3), получаем

$$R = \frac{k^4}{|E_0|^2} \int n \frac{dV}{r^2} \cos\vartheta\, \overline{|p_\perp|^2} =$$

$$= \frac{k^4}{|E_0|^2} \int\limits_0^h dzn \int \overline{|p_\perp|^2}\, d\Omega\,. \qquad (4)$$

Здесь n — плотность частиц в объеме слоя; черта обозначает среднее значение величины в расчете на одну частицу; интегрирование по телесному углу Ω проводится по верхней полусфере; интегрирование по z — в пределах слоя толщиной h.

В приближении независимых рассеивателей будем считать, что каждая частица находится в среднем поле, убывающем в слое по закону

$$E(z) = E_0 \exp\left[-\gamma z/2\right]\,, \qquad (5)$$

где γ — коэффициент экстинкции, определяемый полным сечением частицы:

$$\gamma = n\left(\bar{\sigma}_s + \bar{\sigma}_a\right)\,. \qquad (6)$$

Поскольку сечение поглощения σ_a значительно превышает сечение рассеяния σ_s, коэффициент γ оказывается обратно пропорциональным вычисленной в [5] длине затухания волны в слое:

$$\gamma = n\bar{\sigma}_a = kn_V \overline{\cos^2\theta} \int\limits_0^1 df\, g(f) \frac{\operatorname{Im}\varepsilon}{|1 + f(\varepsilon - 1)|^2}\,. \qquad (7)$$

Здесь $\overline{\cos^2\theta}$ — результат усреднения по углам между наибольшей осью несферической частицы и вектором поляризации падающей волны; n_V — объемная доля металла в слое; $g(f)$ — плотность вероятности распределения гранул по поляризационным факторам; ε — эффективная диэлектрическая проницаемость гранулы. Формула (7) была получена в предположении о преобладающей доле частиц эллипсоидальной формы с малыми отношениями полуосей (малым f) и поперечных размеров частиц по сравнению с глубиной скин-слоя:

$$a \lesssim \delta\,. \qquad (8)$$

Именно такого рода частицы ответственны за большое поглощение в ИК области.

Вводя среднее сечение рассеяния, приходящееся на одну частицу, по формуле

$$\bar{\sigma}_s = k^4 \int \overline{d\Omega |p_\perp(z)|^2 / |E(z)|^2} \qquad (9)$$

и производя интегрирование в формуле (4), находим окончательно

$$R = \frac{1}{2} \frac{\bar{\sigma}_s}{\bar{\sigma}_s + \bar{\sigma}_a} \left[1 - \exp(-\gamma h)\right]\,. \qquad (10)$$

Таким образом, коэффициент отражения определяется отношением средних сечений $\bar{\sigma}_s/\bar{\sigma}_a$. Для малых металлических частиц эллипсоидальной формы это отношение имеет величину

$$\frac{\bar{\sigma}_s}{\bar{\sigma}_a} = \frac{k^3\overline{V^2}}{6\pi\bar{V}} \frac{|\varepsilon - 1|^2}{\varepsilon''} \sim \varepsilon'' \frac{a^2 b}{\lambda^3} \sim \left(\frac{a}{\delta}\right)^2 \frac{b}{\lambda}\,. \qquad (11)$$

Для удлиненных частиц, дающих основной вклад в поглощение, равно как и в рассеяние, $b \lesssim \lambda$, и коэффициент отражения мал по параметру $(a/\delta)^2$. Если $a/\delta \approx 0{,}1$, то формула (11) и дает те несколько процентов отраженного излучения, которые наблюдаются на опыте. Заметим, что при расчете коэффициента отражения мы не учли дополнительное поглощение излучения, рассеянного в среде, что должно привести к еще меньшей величине отраженной волны.

Обсудим зависимость коэффициента отражения от формы поглощающих частиц. Для частиц эллипсоидальной формы и, в частности, для сфер отношение σ_s/σ_a не зависит ни от формы частиц, ни от их ориентации по отношению к полю падающей волны. Однако такая зависимость сохраняется в величине полного сечения рассеяния, определяющей обратную длину затухания γ. Для вытянутых частиц эллипсоидальной формы, как показано в [5], величина γ на один–два порядка превышает соответствующее значение для сферических частиц. Таким образом, полное поглощение в случае протяженных гранул возможно в слое в десятки и сотни раз более тонком, чем в случае сферических частиц.

Как можно видеть из выражения (7), длина затухания зависит также от характера распределения по размерам, форме и ориентациям частиц, образующих слой. Так, ответственный за ориентацию частиц множитель $\overline{\cos^2\theta}$ в случае равнораспределения по всем направлениям равен 1/3, а в случае равнораспределения в плоскости составляет 1/2. Численное значение коэффициента отражения от слоя зависит от всех упомянутых факторов.

В заключение заметим, что, как ясно из изложенного, все вышеприведенные результаты получены в приближении однократного рассеяния. С учетом доминирующей роли поглощения на отдельной частице условие применимости приближения однократного рассеяния сводится к

$$n\sigma_s h \ll 1\,, \qquad (12)$$

что является значительно менее жестким по сравнению с ситуацией, когда рассеяние и поглощение отдельной частицей сравнимы [7]. Из условия (12) получаем следующую оценку длины затухания волны в слое:

$$L \gg (a/\delta)^2 h\,, \tag{13}$$

которая показывает, что полное поглощение падающего излучения может реально происходить в толщине слоя частиц, весьма малой по сравнению с длиной волны λ.

Авторы признательны И. М. Фуксу за ценные обсуждения ряда вопросов теории рассеяния в случайно-неоднородных средах и в особенности за указание критерия (12), который имеет принципиальный характер для настоящего рассмотрения.

Работа финансировалась Фондом фундаментальных исследований Государственного комитета по науке и технологиям Украины.

1. В. С. Лысенко, А. Ф. Мальнев, *Тепловые приемники излучения*, Киев (1967), с. 146; В. С. Лысенко, А. Ф. Мальнев, В. М. Столяров, там же, с. 171.
2. А. А. Баутин, Ю. А. Поляков, В. И. Сафронов, А. А. Шиляев, *Оптико-механическая промышленность*, **4**, 29 (1979).
3. R. Devaty and A. J. Sievers, *Phys. Rev.* **B41**, 7421 (1990).
4. R. Claro and C. Fuchs, *Phys. Rev.* **B33**, 7956 (1986).
5. А. Я. Бланк, Ф. К. Касумов, А. Я. Шаршанов, А. А. Шиляев, *ФНТ* **18**, 1048 (1992).
6. В. В. Максименко, В. А. Крикунов, А. А. Лушников, *ЖЭТФ* **102**, 1571 (1992).
7. A. Ishimaru, *Wave propagation and scattering in random media*, Acad. Press, New York (1978), vol. 1.

Reflectance of IR radiation from high absorbing layer of ultra-fine metallic particles

A. Ya. Blank and A. Ya. Sharshanov

The IR radiation reflectance is calculated of a thin (with the thickness of an order of vacuum wave length λ) layer of small metallic particles. Before, we have shown that such a layer of a small particles density absorbes nearly entirely all the incident radiation in a wide IR wavelength range. The effect is connected with the free penetration of the ac field into the quasimetallic high-dispersive medium and is caused by the resonant excitation of surface electromagnetic waves in nonspherical metallic particles. The reflectance of the incident radiation from a layer turns out to be small as defined by a parameter σ_s/σ_a, where σ_s and σ_a are scattering and absorption cross-sections by a single particle, respectively. The reflectance by an order of magnitude is equal to $(V/\lambda^3)|\varepsilon|$, where V is the particle's volume; ε is the dielectric function of a metal. In a typical experimental situation the reflectance amounts to no more than several percents of incident radiation.