

РАСЧЕТ РАССЕЯНИЯ И ПОГЛОЩЕНИЯ ИНФРАКРАСНОГО ИЗЛУЧЕНИЯ ЧАСТИЦАМИ ЗОЛОТА ЦИЛИНДРИЧЕСКОЙ ФОРМЫ

В. Н. Лебедева

Проведены расчеты коэффициентов ослабления для частиц золота цилиндрической формы, помещенных в пустоте ($m_0=1$) и в полимерной среде ($m_0=1.519$). Расчеты даны для спектральной области $0.4 \div 10$ мкм, параметр $x=2\pi a/\lambda$ изменяется от 0.1 до 6. Из анализа полученных кривых дана зависимость дихроизма от диаметра цилиндра и показателя преломления связующей среды. Разобран вопрос о смене знака дихроизма в применении к поляризационным золотым текстурам, полученным экспериментально.

Введение

Создание металлических текстур, поляризующих инфракрасное излучение, привело к необходимости проведения расчетов поглощения и рассеяния света анизотричными металлическими частицами [1-3], поскольку сами текстуры состоят из удлиненных ориентированных в одном направлении частиц золота, внедренных в пленку полимера. Первоначально расчеты были проведены для видимой и ближней инфракрасной областей спектра от $400 \div 1400$ нм. Расчеты проводились в двух приближениях: с одной стороны, по формулам Ганса для эллипсоидальных частиц с размерами, много меньшими длины волны [2], с другой, по формулам Ми для сферических частиц с учетом размеров [3]. В последнем случае для учета анизотричности вычисления проводились для двух сфер, диаметры которых равны длине и ширине частицы. Проведенные расчеты позволили выявить основные закономерности оптических свойств текстур в зависимости от размеров и формы частиц. По мере создания поляризующих текстур для более длинноволновой области спектра [4, 5] возникла необходимость проведения расчетов для большего диапазона размеров частиц и для более широкой области длин волн. Электронномикроскопические исследования показали наличие в «длинноволновых» текстурах больших сильно удлиненных частиц золота, у которых отношение длины к ширине достигает $20 \div 30$ [5]. В связи с этим представляется более целесообразным проведение дальнейших расчетов для цилиндрических частиц золота. Решение задачи рассеяния света одним цилиндром тесно смыкается с задачей дифракции света на металлических решетках, так как в некоторых случаях действие решетки рассматривается как суммарный результат действия отдельных стержней [6].

В настоящее время известно очень незначительное количество расчетов рассеяния света цилиндрическими частицами и особенно металлическими. Результаты большинства расчетов обобщены в книге [7], там же приведены результаты расчетов для металлических цилиндров с показателем преломления $m=\sqrt{2}(1-i)$.

Схема расчетов

Были проведены расчеты факторов эффективности ослабления $Q_{\text{осл.}}$ и рассеяния — $Q_{\text{рас.}}$ для цилиндрических частиц золота. Ослабление складывается из рассеяния и поглощения, так что $Q_{\text{осл.}} = Q_{\text{рас.}} + Q_{\text{пог.}}$.

$Q_{\text{осл.}}$ и $Q_{\text{рас.}}$ связаны с коэффициентом ослабления $C_{\text{осл.}}$ и коэффициентом рассеяния — $C_{\text{рас.}}$ следующими соотношениями:

$$C_{\text{осл.}} = Q_{\text{осл.}} g, \quad C_{\text{рас.}} = Q_{\text{рас.}} g,$$

где g — поперечное сечение цилиндра. Все основные функциональные зависимости включают в себя $Q_{\text{осл.}}$ и $Q_{\text{рас.}}$. При расчете использовались формулы для бесконечно длинных цилиндров [7]. Переход для цилиндров конечной длины (при условии $l \gg \lambda$ и $l \gg a$, где a — радиус цилиндра, а l — его длина) осуществляется по формуле

$$c_{\text{осл.}} = l C_{\text{осл.}},$$

где $c_{\text{осл.}}$ — коэффициент ослабления для цилиндра конечной длины l , а $C_{\text{осл.}}$ — коэффициент ослабления для бесконечно длинного цилиндра.

Отдельно вычислялись значения Q_{\parallel} (фактора эффективности ослабления для случая, когда вектор \mathbf{E} направлен вдоль оси цилиндра) и Q_{\perp} , когда вектор \mathbf{E} направлен перпендикулярно оси цилиндра

$$Q_{\parallel \text{осл.}} = \frac{2}{x} \sum_{n=-\infty}^{n=+\infty} \operatorname{Re} b_n, \quad Q_{\parallel \text{рас.}} = \frac{2}{x} \sum_{n=-\infty}^{n=+\infty} |b_n|^2,$$

$$Q_{\perp \text{осл.}} = \frac{2}{x} \sum_{n=-\infty}^{n=+\infty} \operatorname{Re} a_n, \quad Q_{\perp \text{рас.}} = \frac{2}{x} \sum_{n=-\infty}^{n=+\infty} |a_n|^2,$$

$x = 2 \pi a / \lambda$, a — радиус цилиндра.

$y = m x$ $m = n - i x$ — комплексный показатель преломления,

$$b_n = \frac{m J'_n(y) J_n(x) - J_n(y) J'_n(x)}{m J'_n(y) H_n(x) - J_n(y) H'_n(x)}; \quad b_n = b_{-n},$$

$$a_n = \frac{J'_n(y) J_n(x) - m J_n(y) J'_n(x)}{J'_n(y) H_n(x) - m J_n(y) H'_n(x)}; \quad a_n = a_{-n},$$

J_n — цилиндрические функции первого рода или функции Бесселя, H_n — цилиндрические функции третьего рода или функции Ханкеля. Расчеты проводились на ЭВМ Урал-2.¹ Расчеты были проведены для цилиндров из золота, включенных в связывающую среду с показателем преломления $m_0 = 1$ и $m_0 = 1.519$ — случай поливинилового спирта. Интервал длин волн в одной серии расчетов составлял $0.4 \div 1.4$ мкм, в другой $0.4 \div 10$ мкм. Радиус цилиндров изменялся от 20 до 400 нм, что значительно перекрывало экспериментально найденные поперечные размеры частиц золота в текстурах [5]. При выбранных значениях a и λ параметр x меняется от 0.1 до 6. Оптические константы золота были взяты из работ [8-10].

Обсуждение результатов

Результаты вычислений приведены на рис. 1. Кривые показывают резкое различие значений Q_{\parallel} и Q_{\perp} для цилиндров одного размера. В видимой области спектров до ~ 700 нм сильнее поглощается луч с колебаниями, перпендикулярными оси цилиндра $Q_{\perp} > Q_{\parallel}$, а в ближней инфракрасной области сильнее поглощается луч с колебаниями электрического вектора, направленными вдоль оси цилиндра $Q_{\parallel} > Q_{\perp}$. Таким

¹ Автор выражает благодарность А. Ф. Диарту за составление соответствующей программы.

образом, рассчитанные кривые поглощения показывают наличие четко выраженного дихроизма при рассеянии света на частице золота цилиндрической формы. Все кривые коэффициента ослабления для Q_{\perp} обнаруживают четко выраженные максимумы поглощения. По мере увеличения диаметра цилиндра максимумы на кривых сначала увеличиваются по интенсивности, а затем расширяются и одновременно смещаются в длинноволновую область. Подобная закономерность наблюдается на кривых поглощения,

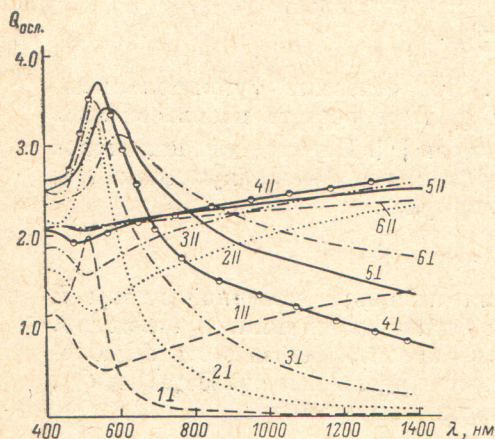


Рис. 1. Кривые ослабления для цилиндров золота. Показатель преломления связующей среды.

$m_0 = 1.519$, \perp — кривые Q_{\perp} , \parallel — кривые Q_{\parallel} , радиус цилиндров: 1 — 20, 2 — 40, 3 — 60, 4 — 100, 5 — 200, 6 — 500 нм.

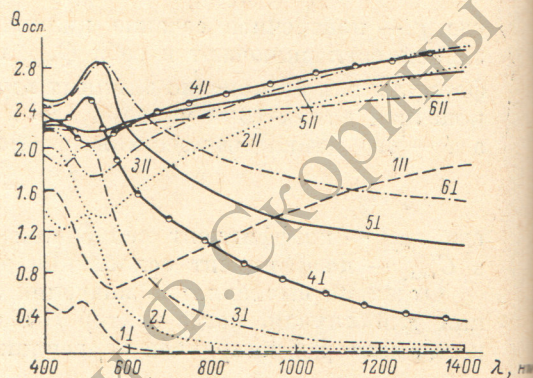


Рис. 2. Кривые ослабления для цилиндров золота.

$m_0 = 1$, остальные обозначения те же, что и на рис. 1.

рассчитанных для сферических частиц золота разных диаметров, помещенных в водную среду ($m_0 = 1.333$) или в пленку поливинилового спирта [3, 11]. На кривых Q_{\parallel} в видимой области обнаруживаются достаточно четкие минимумы, которые сглаживаются по мере увеличения диаметра цилиндрических частиц.

Сходство кривых ослабления, и для цилиндров, доказывает

слабую зависимость коэффициентов ослабления и рассеяния от формы частиц [7, 12]. В свою очередь это подтверждает правомочность применения формул Ми для сферических частиц к удлиненным частицам, как это было сделано в работе [3].

На рис. 2 приведены кривые поглощения, рассчитанные для цилиндрических частиц золота тех же диаметров, но помещенных в пустоте $m_0 = 1$. Общий ход кривых поглощения тот же. Сравнение кривых рис. 1 и 2

позволяет наглядно выявить влияние показателя преломления связующей среды на ход кривых поглощения. Увеличение m_0 приводит к увеличению максимумов поглощения по абсолютной величине и к небольшому их смещению в длинноволновую область, что видно из таблицы. Подобное влияние показателя преломления связующей среды на ход кривых поглощения отмечалось и ранее в работах [13, 14].

Если за меру дихроизма принять разность значений Q_{\parallel} и Q_{\perp} , то можно видеть (рис. 3), что существует оптимальный размер цилиндрических частиц, дающих наибольшую величину дихроизма ($a = 60$ нм). Кроме того, кривые рис. 3 показывают, что для данного диаметра цилиндра дихроизм

Радиус цилиндра, нм	Положение максимумов поглощения, нм	
	$m_0 = 1$	$m_0 = 1.519$
20	490	515
40	500	530
60	505	535
200	525	575
400	540	605

в инфракрасной области за 800 нм всегда больше для случая $m_0=1$, чем для $m_0=1.519$. Расчет коэффициентов ослабления для цилиндров золота в более длинноволновой области спектра показал наличие сильного ди-

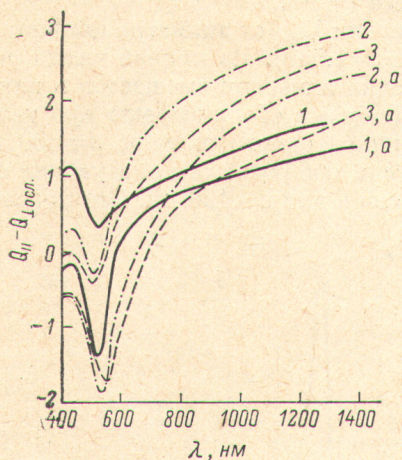


Рис. 3. Кривые дихроизма для цилиндров золота.

Показатель преломления связующей среды $m_0=1$, a — кривые для $m_0=1.519$; радиус цилиндров: 1 — 20, 2 — 60, 3 — 100 нм.

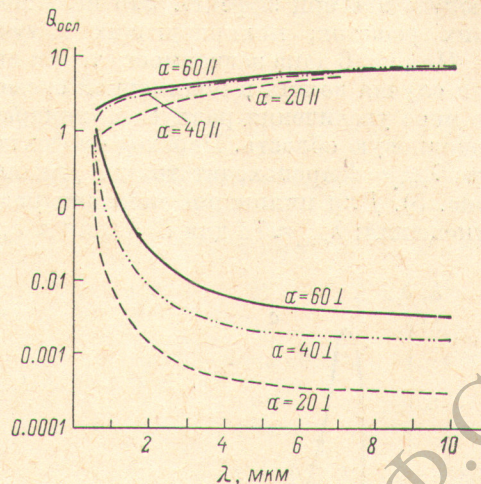


Рис. 4. Кривые ослабления для цилиндров золота.

$m_0=1$, a — радиус цилиндров, нм.

хроизма во всей области проведенных расчетов вплоть до 10 мкм. Разница в значениях $Q_{||}$ и Q_{\perp} очень велика и достигает $3 \div 4$ порядков (рис. 4).

Из всего сказанного следует, что даже в случае бесконечных цилиндров (крайний случай анизотричности частиц) для получения максимального дихроизма требуется определенный «оптимальный» диаметр цилиндров.

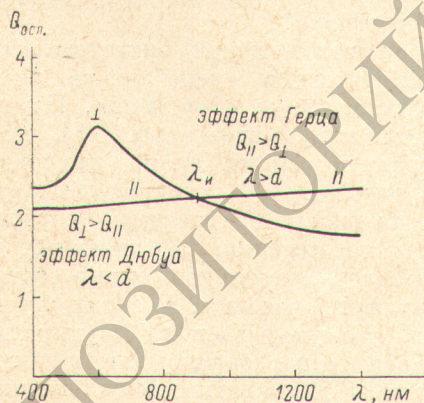


Рис. 5. Кривые ослабления для цилиндров золота диаметром 800 нм. λ_n — точка инверсии.

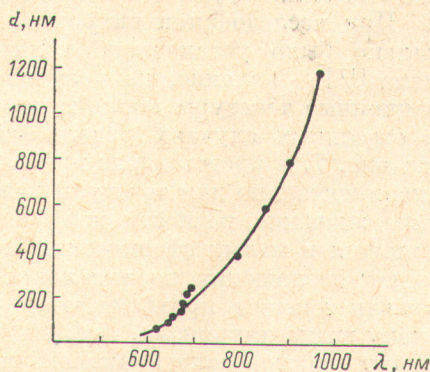


Рис. 6. Зависимость точки инверсии λ_n от диаметра цилиндров d .

Анализ кривых ослабления, рассчитанных для цилиндров золота (рис. 1), показывает, что кривые $Q_{||}$ и Q_{\perp} для каждого определенного размера цилиндров имеют точку пересечения — точку инверсии. В видимой области, где $Q_{\perp} > Q_{||}$, наблюдается так называемый «Дюбуа эффект», который выполняется при условии, что длина волны много меньше диаметра цилиндра $d \gg \lambda$. В инфракрасной области, где сильнее поглощается компонента с колебаниями вдоль оси цилиндра $Q_{||} > Q_{\perp}$, наблю-

дается «Герц эффект» при выполнении условия $\lambda \gg d$. На рис. 5 приведены кривые ослабления Q_{\perp} и Q_{\parallel} для случая $m_0=1.519$, $d=800$ нм. Как следует из кривых рис. 1 и 5, существует непрерывный переход «эффекта Дюбуа» в «Герц эффект». Это явление подробно изучено для металлических решеток, поляризующих излучение [15, 16].

На рис. 6 дана зависимость точки инверсии $\lambda_{\text{инв}}$ от диаметра цилиндров для случая золота в полимерной среде ($m_0=1.519$). Из кривой видно, что по мере увеличения радиуса цилиндра точка инверсии смещается в длинноволновую область. Переход «эффекта Дюбуа» в «Герц эффект» при условии $\lambda_{\text{инв}}=d$ происходит только для цилиндра одного размера $d=800$ нм (рис. 5). Для цилиндров меньших радиусов наблюдаются следующие соотношения: $\lambda_{\text{инв}} \approx 7d$ для $d=80$ нм и $\lambda_{\text{инв}} \approx 5d$ для $d=120$ нм. Это показы-

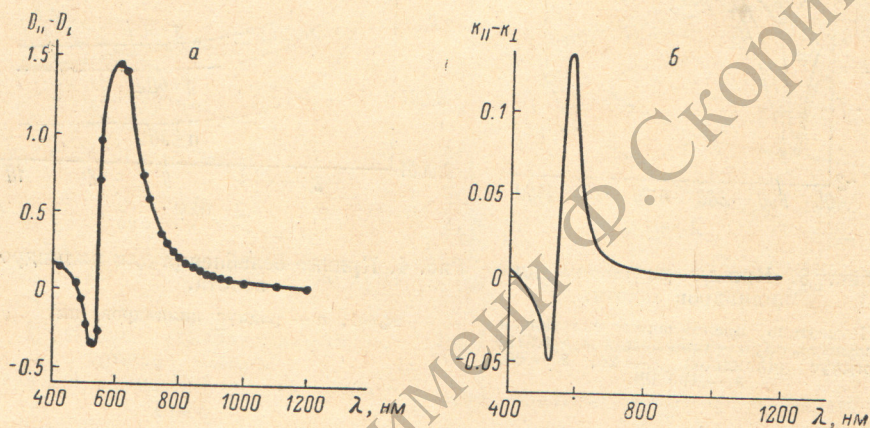


Рис. 7. Кривая дихроизма поляризационной текстуры (а) и кривая разности коэффициентов ослабления для «больших» и «малых» сферических частиц (б).

вает, что существует некоторая область соотношений $\lambda_{\text{инв}}$ и d , где происходит смена «эффекта Дюбуа» на «Герц эффект».

При исследовании дихроизма коллоидных металлов экспериментально было установлено наличие двухкратной смены знака дихроизма [17] — явление, не получившее достаточного объяснения. Поляризационные текстуры коллоидного золота, полученные нами [1, 2], также в отдельных случаях давали двухкратную смену знака дихроизма. На рис. 7, а представлена кривая дихроизма $D_{\parallel} - D_{\perp}$,² определенная экспериментально для текстуры золота. На рис. 7, б приведены теоретические значения разности коэффициентов поглощения, рассчитанных для больших и малых сферических частиц золота, что приблизительно соответствует поглощению вдоль и поперёк вытянутой частицы. В обоих случаях кривая дважды проходит через нуль, что указывает на двухкратную смену знака дихроизма. При расчетах общего поглощения для цилиндрических частиц золота аналогичный ход с двухкратным прохождением через нуль обнаруживает кривая для цилиндров с радиусом равным 60 нм при $m_0=1$ (рис. 3). Таким образом, двухкратная смена знака дихроизма в конкретном случае золотых текстур объясняется спектральным ходом коэффициентов ослабления для частиц золота определенных размеров.

Разделение коэффициента ослабления на коэффициенты рассеяния и поглощения показывает, что в видимой области максимумы обнаруживаются как на кривых поглощения, так и на кривых рассеяния. В инфракрасной области после 800 нм значения $Q_{\text{пог}}$ настолько малы, что

² D_{\parallel} и D_{\perp} — оптическая плотность, измеренная для двух направлений поляризации света.

эффект дихроизма объясняется только разностью в значениях коэффициентов рассеяния.

В заключение автор выражает благодарность Г. И. Дистлеру за постановку работы и постоянный интерес, а также Б. Н. Гречушникову за помощь и обсуждение результатов.

Литература

- [1] В. Н. Лебедева, Г. И. Дистлер, Б. Н. Гречушников. ДАН СССР, 167, 556, 1966.
- [2] В. Н. Лебедева, Г. И. Дистлер. Опт. и спектр., 23, 968, 1967.
- [3] В. Н. Лебедева, Г. И. Дистлер. Опт. и спектр. Сб. 4 «Спектроскопия твердого тела», 34, 1969.
- [4] Г. И. Дистлер, А. В. Котов, Е. И. Кортуклова, В. Н. Лебедева. Опт. и спектр., 20, 541, 1966.
- [5] В. Н. Лебедева, Г. И. Дистлер, Н. М. Борисова, Ю. М. Герасимов. Коллоид. ж., 31, 405, 1969.
- [6] B. Agdur, G. Böling, F. Sellberg. Phys. Rev., 130, 996, 1963.
- [7] Г. ван де Хюлст. Рассеяние света малыми частицами. ИЛ, М., 1961.
- [8] L. G. Schulz. J. Opt. Soc. Am., 44, 357, 1954.
- [9] K. Forsterling, V. Freedericksz. Ann. Phys., 40, 201, 1913.
- [10] В. Г. Падалка, И. Н. Шкляревский. Опт. и спектр., 11, 527, 1961.
- [11] G. Mie. Ann. Phys., 25, 377, 1908.
- [12] К. С. Шифрин. Рассеяние света в мутной среде. ГИТТИ, М.—Л., 1957.
- [13] J. Reptsche. Acta Physicochem., 5, 173, 1936.
- [14] М. В. Савостьянова. Усп. физ. наук, 22, 1, 1939.
- [15] К. Шефер, Ф. Матосси. Инфракрасные спектры. ОНТИ, М., 1935.
- [16] A. Spohn. Phys. Zs., 21, 444, 1920.
- [17] S. Berkman, J. Bohm, H. Zocher. Z. phys. Chem., B124, 83, 1926.

Поступило в Редакцию 4 января 1971 г.