# МОРФОЛОГІЯ ТА СПЕКТРИ ПОГЛИНАННЯ УЛЬТРАТОНКИХ ПЛІВОК СРІБЛА

I. М. Болеста, А. В. Бородчук, О. О. Кушнір, І. І. Колич, І. І. Сиворотка<sup>\*</sup> Факультет електроніки Львівського національного університету імені Івана Франка,

Науково-навчальний центр "Фрактал", Львів, 79005, Україна

\*Відділ фізики та технології кристалів, Науково-виробниче підприємство "Карат",

Львів, 79031, Україна

(Отримано 08 лютого 2011 р.; в остаточному вигляді — 05 жовтня 2011 р.)

Досліджено оптичні спектри поглинання та морфологію ультратонких плівок срібла, напилених у вакуумі  $10^{-6}$  торр на скляні підкладки. Показано, що у області масових товщин  $d_m = 1.1...5.6$  нм головними елементами структури є частинки у вигляді еліпсоїдів із відношенням головних осей  $a:b:c\approx 1:0.5:0.5$ , визначені усереднені значення геометричних параметрів таких еліпсоїдів. Визначено фрактальну розмірність структур, сформованих металічною фазою, що лінійно залежить від  $d_m$ .

У спектрах поглинання плівок спостерігається смуга у області 400...500 нм, яка пов'язується з колективним збудженням вільних електронів у металічних частинках, які називають поверхневим плазмонним резонансом. Зі збільшенням масової товщини максимум смуги зміщується в довгохвильову область з одночасним зростанням поглинання на довгохвильовому її спаді. Товщинну залежність спектра пояснюємо сильним неоднорідним розширенням смуги внаслідок збільшення кількості й розмірів кластерів, відхиленням їхньої форми від сферичної та електродинамічною взаємодією кластерів у полі світлової хвилі.

Запропоновано критерій визначення перколяційного переходу в плівках з вигляду їхніх спектрів поглинання. Отримане запропонованим методом значення межі перколяції добре співвідноситься зі значеннями, визначені іншими методами.

Моделюванням оптичного спектра пропускання плівки з масовою товщиною  $d_m = 17.5$  нм біля межі перколяції визначено дисперсію дійсного та уявного складників діелектричної функції й оцінено феноменологічний параметр A, що описує розмірну залежність діелектричної проникливості матеріалу.

**Ключові слова**: ультратонкі плівки срібла, спектри поглинання, поверхневий плазмонний резонанс, АСМ-топологія.

PACS number(s): 78.66.Bz, 36.40.Gk, 78.20.-e

### I. ВСТУП

Останніми роками інтенсивно досліджують нанокомпозитні оптичні матеріали, що являють собою суміш двох чи більше нанорозмірних гомогенних фаз. Важливими представниками таких матеріалів є метал-діелектричні композити, які мають унікальні електромагнітні властивості, особливо в околі перколяційного переходу. Фундаментальні явища, пов'язані з локалізацією та делокалізацією електронів та оптичних збуджень, відіграють важливу роль у таких композитах, а індуковані світлом плазмонні моди зумовлюють гігантське підсилення лінійних та нелінійних оптичних відгуків у широкому спектральному діапазоні [1–5].

Ультратонкі металеві плівки можна віднести до класу двовимірних наноструктурованих матеріалів, тому що вони містять провідну (кластери металу) та діелектричну (порожнини) фази. Їх отримують на перших стадіях напилення металу на діелектричні підкладки, коли виростають тільки ізольовані металічні кластери, що формують розупорядковані композити з фрактальною структурою [6]. Зі збільшенням часу напилення, а отже концентрації металічної фази p, спостерігаємо збільшення кількості, подальший ріст та об'єднання (злипання) металічних кластерів. За певної концентрації  $p_c$  характер електропровідності нанокомпозита стає металічним [6–9].

При невеликих відхиленнях від граничної концентрації  $p_c$  у провідній фазі нанокомпозита ще існують пори (діелектрична фаза) та локальні металічні включення [10]. При подальшому напиленні локальні кластери й пори зникають, тобто утворюється "товста" плівка металу з неоднорідною субструктурою.

Історично першими досліджували залежності електропровідності ультратонких плівок від їхньої товщини (розмірні ефекти), а для пояснення експериментальних даних в околі  $p \approx p_c$  використовували класичну перколяційну теорію [9,11]. Останніми роками виявлено квантові ефекти (тунелювання між кластерами, одноелектронна локалізація та ін.), які реєструють навіть при кімнатних температурах [12].

Оптичні дослідження перколяційних переходів вивчали на прикладі систем "металічний кластердіелектрична матриця", отриманих методом керметтехнологій [13–18]. Дослідження стосувалися головно поведінки поглинальної здатності A при  $p \approx p_c$  цих об'єктів в ІЧ-області на фіксованих довжинах хвиль. Було встановлено, що поглинальна здатність не залежить від довжини хвилі при  $p \approx p_c$ , а вигляд спектрів в околі перколяційного переходу не описується в моделі ефективної діелектричної проникливості і залежить від фрактальної морфології кластерів [19].

У цій праці досліджено морфологію та оптичні спектри ультратонких плівок срібла в доперколяційній області товщин. Вибір матеріалу обґрунтований тим, що кластерам срібла властивий сильний плазмонний резонанс у видимій ділянці спектра [20], а його діелектрична функція має велику від'ємну дійсну частину та відносно малу уявну частину (порівняно з Au, Cu), що "забезпечує" малі втрати на оптичних частотах, а отже можливість його використання в наноплазмоніці [1,2,21,22].

## II. ДОСЛІДЖУВАНІ ОБ'ЄКТИ ТА МЕТОДИКА ДОСЛІДЖЕНЬ

Ультратонкі плівки срібла отримували методом термічного випаровування металу на скляні підкладки у вакуумі  $10^{-6}$  торр зі швидкістю 0.010–0.016 нм/с при температурі 290 К. Масову товщину плівок контролювали у процесі напилення за допомогою кварцового резонатора. У різних технологічних циклах були напилені серії плівок з масовою товщиною, що змінювалася в межах від ~1 до ~10 нм.

Топологію плівок досліджували за допомогою атомно-силового мікроскопа Solver PRO47 у напівконтактному режимі на 100-мікронному сканері зондами з радіусом  $\sim 10$  нм. Отримано експериментальні дані для розмірів вікна сканування 0.5; 1; 1.5; 2; 3; та 5 мкм з однаковою кількістю стрічок сканування (256) та точок у стрічці сканування (256).

Результати вимірювань обробляли, щоб усунути апаратні похибки. Перший етап обробки полягав у виключенні із зображення топології підкладки, яку ми апроксимували поверхнею першого (у деяких випадках — другого) порядку. З цією метою від вихідного сиґналу віднімали сталі (або повільнозмінні) складники, які відповідають за нерівності підкладки та кут нахилу зразка щодо зонда.

Оскільки розміри елементів морфології плівок (~10...50 нм) сумірні з розмірами зонда (~10 нм), то отримана при вимірюваннях топологія g(x, y, z) є згорткою реального зображення f(x, y, z) та функції h(x, y, z), що описує форму зонда:

$$g(x, y, z) = \int_{0}^{x} \int_{0}^{y} \int_{0}^{z} f(\xi, \eta, \zeta) \\ \times h(x - \xi, y - \eta, z - \zeta) \, d\xi \, d\eta \, d\zeta. \quad (1)$$

Отже, щоб знайти реальну форму та розміри елементів топології, необхідно визначити функцію f(x, y, z) з інтегрального рівняння (1), що є доволі непростою задачею, враховуючи відсутність даних про вигляд функції h(x, y, z).<sup>1</sup>

Тому для опису даних ACM-досліджень ми запропонували метод зрізів зображень g(x, y, z) площинами z = const. Його суть полягає у такому. На рис. 1,а зображено (схематично) "форму" сиґналу (тобто перетин функції g(x, y, z) площиною x = 0), який отримується при скануванні двох сферичних кульок із радіусом rзондом радіуса  $r_0$ . При достатньо великих відстанях між кульками їх можна "бачити" окремо, а реальний розмір можна визначити з перетину функції g(x, y, z)площиною z = const (товста крива на рис. 1,а).

Якщо кульки розміщені на відстані  $l < 2r_0$ , то зареєстрований сиґнал відображає топологію, характерну для неперервної плівки з неоднорідностями. Підтвердженням цього є зображення краю плівки з масовою товщиною  $d_m = 5.7$  нм та підкладкою (рис. 2). Не зважаючи на те, що структура плівки є доперколяційною, зображення, отримане за допомогою АСМ, є "неперервне" вздовж осей x та y при z < 15 нм і характеризується неоднорідною топологією поверхні при z > 15 нм. Однак і у цьому випадку при зрізі зображення плошиною z = const на певній висоті можна отримати близькі до реальних розміри елементів (рис. 1,б). Оскільки форма зображення і, відповідно, розміри елементів топології у площині зрізу суттєво залежать від висоти h, на якій цей зріз проводимо, то визначення оптимального значення h є важливою задачею. Висоту зрізу h вибирали з діапазону значень, при яких зміни розмірів елементів топології вздовж осей x та y є невеликими при зміні z у широкому діапазоні (схематично цей діапазон відзначений символом А на рис. 1,а).

Запропонований метод визначення параметрів структури можна застосовувати тільки для ультратонких плівок із малою масовою товщиною, для яких глибина "занурювання" зонда у плівку сумірна з її товщиною. У цьому випадку висота частинок Н відраховують від підкладки. При великих масових товщинах, унаслідок перекривання зображення сусідніх елементів, "висоту" відраховують від глобального мінімуму топології Н (рис. 1,б), однак така оцінка дає змогу визначити розміри частинок уздовж осі z. Для оцінки геометрії частинок у площині, паралельній підкладці, визначали довжину частинок L — як найбільшу відстань між двома елементами зображення, що відповідають одному кластеру, та еквівалентний діаметр  $d = \sqrt{\frac{4S}{\pi}}$  — діаметр круга з площею S, що відповідає площі цього кластера. Зі значень L та S зі співвідношення  $S = \frac{\pi L l}{4}$  можна оцінити ширину кластера *l*, вважаючи його форму еліптичною.

<sup>&</sup>lt;sup>1</sup>Детальний розв'язок поставленої задачі буде викладено в окремій публіуації.



Рис. 1. Схематичне зображення сиґналу АСМ, що отримують від сканування зондом радіуса  $r_0$  двох кульок радіуса r, віддаль між якими є більшою (а) та меншою (б) від  $2r_0$ . Зображення у площині xy отримують зрізом сиґналу площиною z = h.



Рис. 2. (Кольоровий онлайн.) Межа переходу плівка Ag<br/> — підкладка при  $d_m = 5.7$  нм.

З характеристики топології поверхні визначали середньоквадратичне значення поверхневої неоднорідності (шорсткості плівки) за формулою

$$\xi = \sqrt{\sum_{i=1}^{n} \frac{|z_i|^2}{n}},$$
(2)

де  $|z_i|$  — відстань *i*-го елемента топології від площини зрізу.

Фрактальну розмірність  $D_f$  обчислювали методом підрахунку боксів (клітинок) як танґенс кута нахилу залежності  $\ln(N(r))$  від  $\ln(1/r)$ , де r — ребро клітинки, а N(r) — число елементів зображення, які містять принаймні один елемент структури. Значення фрактальної розмірності плівок визначали усередненням відповідних величин не менш ніж на чотирьох вікнах сканування з точністю, кращою за ±3%.

Спектри пропускання вимірювали на двопроменевому спектрофотометрі Shimadzu UV–3600 у діапазоні 300...1600 нм з кроком 0.2 нм та спектральною шириною щілини 2.0 нм.

#### III. ЕКСПЕРИМЕНТАЛЬНІ РЕЗУЛЬТАТИ ТА ЇХ ОБҐРУНТУВАННЯ

На рис. 3,а наведено відфільтроване зображення плівки срібла з масовою товщиною  $d_m = 1.1$  нм площею  $\sim 1 \times 1$  мкм<sup>2</sup>. При перетині цього зображення площиною на висоті h = 14 нм отримуємо структуру, зображену на рис. 3,6, на якій темні елементи відповідають металічній фазі, а світлі — діелектричній фазі (повітря). На цьому ж рисунку наведена гістограма розподілу елементів топології плівки за еквівалентними діаметрами. З даних, наведених на рис. 3, випливає, що кластери металу, які формуються на початкових стадіях росту плівок, характеризуються еліпсоїдальною формою. Розміри осей 2а і 2b еліпсоїда визначали з перетину зображення площиною z = const (рис. 3,6), вони збігаються зі значеннями довжини частинки L та її ширини l відповідно. Усереднені за ансамблем кластерів значення цих параметрів для плівки  $d_m = 1.1$  нм становлять L = 46 нм та l = 27 нм. Величина третьої осі еліпсоїда збігається з висотою частинок відносно підкладки і становить 2c = H = 30 нм. Відповідно, співвідношення між осями  $a:b:c \approx 1:0.4:0.4$ , що вказує на те, що форма еліпсоїдів близька до еліпсоїдів обертання.



Рис. 3. АСМ-морфологія плівки Ag  $d_m=1.1$  нм (а), її зріз на висоті 14 нм (б) та гістограма розподілу кластерів за діаметром (в).



Рис. 4. Залежність фрактальної розмірності структур, сформованих металічною фазою від масової товщини плівок срібла  $d_m$ .



Рис. 5. Спектри поглинання плівок срібла з масовою товщиною  $d_m$ =1.1 нм (крива 1), 2.15 нм (криві 2), 3.6 нм (криві 3), 5.7 нм (криві 4).

Аналогічні дані визначено для плівок з масовими товщинами 2.2, 3.6, 4.3 та 5.7 нм (див. таблицю). Отримані з даних АСМ форма та розміри металічних кластерів добре корелюють із результатами досліджень інших авторів [23].

$d_m$ , нм	$S, \mathrm{Hm}^2$	d, нм	$L, \mathrm{HM}$	l,  hm	a:b:c	$\xi$ , hm
1.1	1927	40	46	27	1:0.4:0.4	3.5
2.2	2419	47	69	29	1:0.4:0.5	3.7
3.6	2443	44	47	20	1:0.5:0.9	4.1
5.7	3515	55	79	32	1:0.4:0.5	6.2

Таблиця. Геометричні параметри та "шорсткість" плівок різної масової товщини.



Рис. 6. Залежність спектрального положення максимуму смуги поверхневого плазмонного резонансу (в eB) від масової товщини плівок срібла. Точки — експериментальні хвилі. Лінія — екстраполяція експериментальних даних методом найменшого квадратичного відхилення.



Рис. 7. Спектр поглинання плівки срібла масової товщини 17.5 нм. На вставці: поглинання в короткохвильовій області, де простежується смуга плазмонного поглинання у відокремлених кластерах, що існує в перколяційній структурі.

Ще одною кількісною оцінкою топології зображення, наведеного на рис. 3,а,б може служити фрактальна розмірність структур  $D_f$ , сформованих металічною фазою. Для досліджуваного діапазону масових товщин фрактальна розмірність перебуває в межах 1.31...1.35 та лінійно залежить від  $d_m$  (рис. 4).

На рис. 5 зображено спектри поглинання плівок срібла різної масової товщини. У спектрі плівки Ag з  $d_m = 1.1$  нм реєструється широка смуга поглинання з максимумом при ~ 480 нм. Вона зумовлена колективним рухом вільних носіїв заряду, який обмежується поверхнею металічних кластерів і пов'язується з ППР у кластерах, який трансформується в плазмонполяритонні збудження зі збільшенням розмірів кластерів [22].



Рис. 8. Експериментальний (суцільна лінія) та обрахований (пунктирна лінія) спектри пропускання плівки срібла масової товщини 17.5 нм. Спектральна залежність дійсного  $\varepsilon'$  та уявного  $\varepsilon''$  складників діелектричної проникності для масивного зразка срібла [39] (суцільна лінія) та обрахована з апроксимації експериментального спектра пропускання (пунктирна лінія).

Велику півширину смуги пояснюємо суттєвою дисперсією розмірів кластерів та відхиленням їхньої форми від сферичної. Ці фактори є головними, що дають внесок у неоднорідне розширення смуги ППР. Додаткові внески в неоднорідне розширення можуть бути пов'язані з внеском, у поглинання резонансів на квазісферичних порожнинах [24], а також з існуванням принаймні двох типів плазмон-поляритонних мод, які виникають у досліджуваній системі на межі між сріблом і повітрям та сріблом і скляною підкладкою [25].

Зі збільшенням масової товщини плівок зростає величина плазмонного поглинання, його максимум зміщується в довгохвильову область, і виникає суцільне поглинання у видимій та ближній ІЧ-областях, величина якого корелює з масовою товщиною плівок (рис. 5, криві 2–4).

Еволюція спектрів поглинання ультратонких плівок срібла зі зміною їхньої масової товщини пов'язується зі збільшенням кількості кластерів та збільшенням їхніх розмірів. Це спричиняє зростання величини поглинання (оскільки коефіцієнт екстинції є пропорційним до концентрації кластерів [2]) та зміщенням його максимуму в довгохвильову область.

Інший важливий чинник, що зумовлює сильне зростання поглинання на довгохвильовому спаді смуги, пов'язаний із динамічною взаємодією кластерів у полі світлової хвилі, що утворюють фрактальну структуру. Дійсно, оскільки розміри кластерів є набагато меншими від довжини світлової хвилі, то в них наводяться гігантські (за атомними мірками)дипольні моменти [26]. Сильна диполь-дипольна (а в загальному випадку мультипольна) взаємодія між окремими елементами фрактальних структур може спричиняти суттєвий зсув частоти окремих резонансів [28]. Оскільки фрактальні об'єкти не мають трансляційної симетрії (а отже в них не виникають біжучі хвилі), то описані дипольні збудження у фракталах локалізуються на окремих частинках, що приводить до появи так званих "гарячих точок", у яких електричні та магнітні поля суттєво переважають (~ 10<sup>5</sup> раз і більше) поле падаючої світлової хвилі [29]. Процес локалізації оптичних збуджень розглядають як Андерсонівську локалізацію поверхневих плазмонних мод [5], а самі резонанси відіграють важливу роль у підсиленні лінійно- та нелінійно-оптичних відгуків фрактальних систем [29].

На рис. 6 наведена залежність положення максимуму у спектрі поглинання від масової товщини. Відповідна залежність має лінійний характер, екстраполяція якої до осі абсцис дає певне критичне значення товщини  $d_{\rm kp} = 17.4$  нм. Фізичний зміст  $d_{\rm kp}$ , очевидно, полягає в тому, що у спектрах плівок із такою масовою товщиною буде відсутній максимум поглинання. Цей критерій — відсутність максимуму у спектрах поглинання — ми вибрали для оптичного детектування перколяційного переходу. Отримане значення  $d_{\rm kp}$ добре узгоджується з даними [30], де перколяційний перехід у плівках Ag, напилених на Si-підкладку, визначений методом *in situ* спектральної еліпсометрії, фіксується при товщинах ~ 17 нм.

Для перевірки правильності визначеного значення  $d_{\rm kp}$  ми напилили плівку з  $d_m = 17.5$  нм, спектр поглинання якої показано на рис. 7. Дійсно, у досліджуваній області довжин хвиль поглинання монотонно зростає зі збільшенням  $\lambda$ , а максимуму в поглинанні не спостерігаємо.

На рис. 8 наведено експериментальний (суцільна крива) та розрахований у моделі "срібна металічна плівка на прозорій підкладці [32] (пунктирна крива) спектри пропускання плівки срібла з масовою товщиною 17.5 нм на скляній підкладці. Узгодження експериментального та розрахованого спектрів досягали зміною спектральних залежностей дійсного та уявного складників діелектричної проникливості срібла (рис. 8), а невелике відхилення між спектрами в короткохвильовій ділянці спектра пов'язується з плазмонним резонансом в ізольованих кластерах, які ще існують після перколяційного переходу [29]. Отримані з розрахованого спектра значення  $\varepsilon'$  та  $\varepsilon''$  плівки суттєво відрізняються від значень для об'ємного зразка (8) та добре узгоджуються з даними інших досліджень [33].

З апроксимації спектральної залежності  $\varepsilon$  в моделі Друде [24] оцінено параметр  $\gamma = 0.351$  eB, що описує загасання діелектричної функції. У класичній теорії загасання  $\gamma_{\infty} = \frac{v_{\rm F}}{l_{\infty}} (l_{\infty} - довжина вільного пробі$ гу електронів) зумовлюється електрон-електронними $(<math>\nu_{\rm ee}$ ), електрон-фононними ( $\nu_{\rm ep}$ ) зіткненнями та зіткненнями електронів із дефектами кристалічної ґратки ( $\nu_{\rm ed}$ ):

$$\gamma_{\infty} = \nu_{\rm ee} + \nu_{\rm ep} + \nu_{\rm ed},\tag{3}$$

причому чутливий до реальної структури доданок  $\nu_{\rm ed}$ "відповідає" за розкид літературних даних  $\varepsilon(\omega)$  для срібла [24, 34]. Найменше значення  $\gamma = 0.021$  eB отримане в [24] для тонкої (~ 34 нм) плівки з великою площею зерен. Одержане з моделювання спектрів пропускання T значення  $\gamma$  є суттєво більшим, що свідчить про значний внесок у  $\gamma$  процесів розсіювання ня електронів на елементах субструктури "суцільної" плівки, яка формується при невеликому відхиленні від межі перколяції [35, 36]. У цьому випадку розмірна залежність  $\gamma(r)$  описується співвідношенням

$$\gamma(r) = \gamma_{\infty} + \frac{Av_F}{r},\tag{4}$$

де  $v_{\rm F}$  — швидкість Фермі для срібла  $v_{\rm F} = 1.39 \cdot 10^6$  м/с, r — характерний розмір субструктури плівки, який за своїм фізичним змістом повинен відповідати довжині вільного пробігу електронів  $l_e$ , A — безрозмірний параметр, значення якого є неоднаковим для різних нанодисперґованих структур і залежить від природи підкладки, стану поверхні кластерів, площі його контакту з підкладкою та інших факторів. Встановлено, що для вільних кластерів срібла A = 0.25, у випадку кластерів Ag на поверхні Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> A = 0.6, а для повністю впроваджених у діелектричну матрицю Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> кластерів A = 1.6 [21, 36, 37].

Довжину вільного пробігу  $l_e \approx r$  можна оцінити із співвідношення:

$$l_e = \hbar \left(\frac{3\pi^2\varepsilon_0}{m^*e^2}\right)^{1/3} \frac{\omega_p^{2/3}}{\gamma},\tag{5}$$

де e – заряд електрона,  $m^* = 0.85m_e$  [31] — ефективна маса електрона, плазмова частота  $\omega_p = \sqrt{\frac{Ne^2}{\varepsilon_0 m^*}}$ , (N — густина вільних електронів,  $\varepsilon_0$  — діелектрична проникність вакууму), яка для срібла становить 9.1821 еВ.

Отримане зі співвідношення (5)  $l_e \approx 3.1$  нм добре узгоджується з даними [30], але є суттєво меншим від довжини вільного пробігу електронів у масивному зразку ~ 100 нм [38]. Із співвідношення(4) можна оцінити значення A для досліджуваної плівки срібла, якщо відома довжина вільного пробігу  $r \approx l_e$ : для плівки срібла з  $d_m = 17.5$  нм  $A \approx 1.2$ .

# **IV. ВИСНОВКИ**

Експериментально досліджено морфологію та оптичні спектри пропускання ультратонких плівок срібла з доперколяційною структурою. Установлено, які в області масових товщин, що не перевищують ~ 5 нм, головним елементом морфології є металічні частинки у вигляді еліпсоїдів, різко видовжених у площині, паралельній підкладці, з головною віссю ~ 50 – 100 нм.

Визначено фрактальну розмірність  $D_f$ -структур, сформованих металічною фазою, яка лінійно залежить від  $d_m$ .

У спектрах поглинання ультратонких плівок срібла спостерігаємо смугу з максимумом в області  $\sim 480$  нм,

яка пов'язується з поверхневим плазмонним резонансом у кластерах, що трансформується в плазмонполяритонні збудження при збільшенні розмірів кластерів. Зі збільшенням масової товщини плівок максимум зміщується в довгохвильову область, а на її довгохвильовому спаді виникає поглинання. Еволюція спектрів поглинання ультратонких плівок срібла зі зміною їхньої масової товщини пов'язується зі збільшенням кількості кластерів та їхніх розмірів. З

- A. V. Zayats, I. I. Smolyaninov, A. A. Maradudin. Phys. Rep. 408, 131 (2005).
- [2] A. K. Sarychev, V. M. Shalaev, Phys. Rep. 335, 275 (2000).
- [3] K. Dolgaleva, R. W. Boyd, P. W. Milonni, J. Opt. A: Pure Appl. Opt. 11, 024002 (2009).
- [4] W. Kim, V. P. Safonov, V. M. Shalaev, R. L. Armstrong, Phys. Rev. Lett. 82, 4811 (1999).
- [5] A. K. Sarychev, V. A. Shubin, V. M. Shalaev, Phys. Rev. B 60, 16389 (1999).
- [6] S. Ducourtieux *et al.*, J. Nonlin. Opt. Phys. Mater. 9, 105 (2000).
- [7] З. В. Стасюк, А. В. Бородчук, Р. І. Бігун, Хім. фіз. тверд. тіла 4, 632 (2003).
- [8] А. В. Бородчук, О. Б. Дорош, З. В. Стасюк, Вісн. Львів. ун-ту. Сер. фіз. **31**, 95 (2000).
- [9] Л. К. Чопра, Электрические явления в тонких пленках (Мир, Москва, 1972).
- [10] G. B. Smith, A. A. Earp, Nanotechnology 21, 015203 (2010).
- [11] З. В. Стасюк, А. І. Лопатинський, Фіз. хім. тверд. тіла
   **2**, 521 (2001).
- [12] W. B. Su, C. S. Chang, Tien T. Tsong, J. Phys. D: Appl. Phys. 43, 013001 (2010).
- [13] M. Gadenne, J. Lafiat, P. Gadenne, Opt. Commun. 71, 273 (1989).
- [14] M. Gadenne, J. Lafiat, P. Gadenne, Physica A 157, 400 (1989).
- [15] P. Gadenne, Y. Yagil, G. Deutscher, Physica A 157, 279 (1989).
- [16] P. Gadenne, A. Beghdadi, J. Lafait, Opt. Commun. 65, 17 (1988).
- [17] S. Bertheir, J. Peiro, S. Fagnent, P. Gadenne, Physica A 241, 1 (1997).
- [18] P. Gadenne, D. Gagnot, M. Masson, Physica A 241, 161 (1997).
- [19] J. F. Muzy, B. Pouligny, E. Freysz, F. Argoul, A. Arneodo, Phys. Rev. A 45, 8961 (1992).

експериментальних спектрів отримано критерій визначення межі перколяції. Наведені дані свідчать, що перколяційний перехід у плівках Ag відбувається при масових товщинах ~ 17.4 нм.

З порівняння експериментального та змодельованого спектрів пропускання отримано значення  $\varepsilon C'(\omega)$  і  $\varepsilon C''(\omega)$  для плівки Ag з  $d_m = 17.5$  нм. Визначено значення феноменологічного параметра A = 1.2.

- [20] Є. Ф. Венгер, А. В. Гончаренко, М. Л. Дмитрук, Оптика малих частинок і дисперсних середовищ (Наук. думка, Київ, 1999).
- [21] V. P. Drachev et al., Opt. Express 16, 1186 (2008).
- [22] U. Kreibig, M. Vollmer, Optical properties of Metal clusters (Springer-Verlag, Berlin, 1999).
- [23] W. E. Vargas, D. E. Azofeifa, N. Clark, X. Márquez, J. Phys. D: Appl. Phys. 41, 025309 (2008).
- [24] P. B. Johnson, R. W. Christy, Phys. Rev. B 6, 4370 (1972).
- [25] W. L. Barnes, J. Opt. A: Pure Appl. Opt. 11, 114002 (2009).
- [26] G. B. Smith, A. A. Earp, Nanotechnology 21, 015203 (2010).
- [27] S. Coyle *et al.*, Phys. Rev. Lett. **87**, 176801 (2001).
- [28] С. В. Карпов, В. В. Слабко. Оптические и фотофизические свойства фрактально-структурированных золей металлов (СО РАН, Новосибирск, 2003).
- [29] K. Seal et al., Phys. Rev. Lett. 97, 206103 (2006).
- [30] T. W. H. Oates, A. Mücklich, Nanotechnology 16, 2606 (2005).
- [31] A. G. Mathewson, H. Aronsson, L. G. Bernland, J. Phys.
   F: Met. Phys. 2, L39 (1972).
- [32] W. Chen, M. D. Thoreson, S. Ishii, A. V. Kildishev, V. M. Shalaev, Opt. Express 18, 5124 (2010).
- [33] М. Борн, Э. Вольф, Основы оптики (Наука, Москва, 1973).
- [34] J. B. Smith, H. Ehrenreich, Phys. Rev. B 25, 923 (1982).
- [35] A. V. Pinchuk, U. Kreibig, A. Hilger, Surf. Sci. 557, 269 (2004).
- [36] A. Hilger, M. Tenfelde, U. Kreibig, Appl. Phys. B 73, 361 (2001).
- [37] U. Kreibig, M. Gartza, A. Hilgera, R. Neuendorfa, Nanostruct. Mater. 11, 1335 (1999).
- [38] C. Kittel, Introduction to Solid State Physics, 7th ed. (Wiley, New York, 1996).
- [39] E. D. Palik, Handbook of Optical Constants of Solids (Academic Press, Boston, 1985).

## MORPHOLOGY AND ABSORPTION SPECTRA OF ULTRA-THIN FILMS OF SILVER

I. M. Bolesta, A. V. Borodchuk, A. A. Kushnir, I. I. Kolych, I. I. Syworotka<sup>\*</sup>

Faculty of Electronics Ivan Franko National University of Lviv,

Scientific-Educational Center "Fractal", 50, Drahomanov St., Lviv, UA-79005, Ukraine

\* Department of Physics and Technology of Crystals, Scientific Research Company "Carat",

202, Stryiska St., Lviv, UA-79031, Ukraine

We have studied the optical absorption spectra and morphology of ultra-thin films of silver which were deposited in a vacuum of  $10^{-6}$  Torr on glass substrates. It was shown that in the field of mass thickness of  $d_m = 1.1...5.6$  nm structures there are the main elements of the particle as an ellipsoid with the dimensions of  $\sim 39 - 49$  nm. The fractal dimension of structures formed by metallic phase depends linearly on  $d_m$ .

In the absorption spectra of thin films there was observed the band in the region of 400...500 nm which is associated with the surface plasmon resonance. With the growth of mass thickness the band shifts into the longwave region while the increasing of the absorption of a long-wave decline can be explained by a strong growth due to the uneven expansion of the number and size of clusters, their deviation from spherical shape and electrodynamic interaction between clusters in the light wave.

We proposed a criterion for determining the percolation threshold in films with the consideration of their absorption spectra. The received value percolation threshold introduced method is very well correlated with the values that are calculated for silver by other methods.

The fitting of optical spectrum bandwidth leading film  $d_m = 17.5$  nm near the threshold of percolation with a model air-film-substrate succeed in evaluating the phenomenological parameter structure for this material.