

АНОТАЦІЯ

Польовий В. Є. Моделювання поширення плазмон-поляритонних хвиль в шаруватих структурах. — Кваліфікаційна наукова праця на правах рукопису.

Дисертація на здобуття наукового ступеня доктора філософії за спеціальністю 113 “Прикладна математика” (11 “Математика та статистика”).
– Національний університет “Львівська політехніка”, Львів, 2021.

Дисертаційна робота присвячена дослідженню процесу поширення поверхневих плазмон-поляритонних хвиль в гетерогенних структурах діелектрик/метал/діелектрик на границі діелектрик/метал та впливу на них товщини металевого прошарку, умови електронейтральності та кулонівських кореляцій електронів металу.

Шляхом математичного моделювання залежності частоти від хвильового вектора розглянуто різні металеві прошарки, такі як срібло (Ag), золото (Au), алюміній (Al), для яких характерна висока концентрація носіїв заряду. Ці металеві прошарки затиснуті між діелектриками, якими можуть бути вакуум, SiO_2 чи інші полімерні сполуки тощо. Для знаходження частотного спектру (або дисперсійного спектру) в усіх випадках початково розв’язується система макроскопічних рівнянь Максвела для кожного окремо взятого середовища. Застосувавши інтегральне перетворення Фур’є спочатку за часовою змінною t , а потім і за координатами (x, y) в площині металевого прошарку дає в результаті систему хвильових рівнянь. У випадках, коли металевий прошарок розглядається як двовимірний електронна система діелектрична проникність якої залежить тільки від часової змінної/частоти (система характеризується тільки часовою дисперсією), хвильове рівняння в області металу має аналітичний розв’язок. У випадках, коли ж діелектрична проникність металу є також функцією координат (системі властива просторова дисперсія) для отримання аналітичного розв’язку необхідно формулювати додаткові модельні припущення. Отримані розв’язки, в кожному з описаних випадків, зшиваються між собою використовуючи умови неперервності електромагнітних полів на границях середовищ. Із цих

умов в подальшому отримується дисперсійне рівняння для обчислення значень частотного спектру плазмонів.

Для знаходження частотного спектру плазмонних хвиль важливо змоделювати металевий прошарок [80]. У значній кількості робіт з дослідження поширення плазмонних хвиль з цією метою використовується класична теорія Друде-Лоренца. Попри всі недоліки цієї моделі [80, 81], зокрема нехтування взаємодією електронів та іонів ґратки, припущення, що довжина вільного пробігу електронів не залежить від температури, ця модель для металевих прошарків, товщина яких не є нанорозмірною, дає доволі хороше узгодження з експериментальними даними. При математичному моделюванні на першому етапі плазмонний спектр розраховано для моделі Друде та порівняно із результатами, отриманими для квантової моделі хаотичних фаз (RPA). Металевий прошарок, в цьому випадку, розглянуто як 2D електронну систему площа якої є безмежно великою в порівнянні з розміром досліджуваної системи вздовж OZ . Результати моделювання показали, що для малих значень хвильового вектора значення частотного спектру в обох випадках практично співпадають, проте значно відрізняються для більших значень хвильового вектора. Ці результати узгоджуються з результатами отриманими в інших працях оглянутими в ході виконання цього дослідження.

Наступним завданням цієї роботи було дослідження впливу просторової дисперсії на поведінку частотного спектру, зокрема для випадку атомно-тонких металевих плівок. У цій моделі метал розглядається як електронний газ поміщений у потенціальну яму, стінками якої є діелектричні середовища. Ця модель дозволяє дослідити залежність діелектричної проникності від z координати та врахувати залежність поведінки частотного спектру від товщини металу. Оскільки, в запропонованій математичній моделі поширення плазмонних хвиль, як уже зазначалось, дисперсійне рівняння залежить від розв'язку хвильового рівняння, то для отримання аналітичних їх розв'язків застосовано розклад магнітної напруженості поля за малим параметром, де у ролі малого параметру взято відношення між реальною діелектричною проникністю та її усередненням по z координаті. Результати отримані з допомогою математичного моделювання для структури параметри якої

відповідають гетерогенній плазмонній конфігурації $SiO_2/Ag/Si$ показують, що для металевих плівок, товщина яких вимірюється в атомних моношарах, результати для моделі побудованої тут краще узгоджуються з експериментальними даними в порівнянні з моделлю Друде та при збільшені кількості моношарів прямує знизу до значень розрахованих в рамках моделі Друде для однакових фізичних параметрів областей досліджуваних структур.

Попри те, що побудова моделі, яка дозволила вивчити вплив товщини металу на частотний спектр плазмонних хвиль наблизилася до експериментальних даних, подальше покращення результатів моделювання виявилось необхідним. Для цього було розглянуто додаткові модельні припущення щодо того, які фізичні явища та процеси можуть краще описати об'єкт дослідження та покращити отримані результати. Принагідно необхідно зауважити, що усі наступні розглянуті фізичні процеси мають квантову природу та пов'язані з поведінкою електронів в металевій системі та їхнім проникненням в зони діелектриків на границях дотику з металевим прошарком.

З численних досліджень відомо, що для нанорозмірних атомно-тонких металевих плівок квантово розмірні ефекти відіграють суттєву роль в поведінці металеві системи тому логічним є припущення, що врахування цих ефектів так само вплинуть на поведінку плазмонної хвилі, яка поширюється по поверхні металу. Початково запропоновано розглянути вплив проникнення електронів в шар діелектрика через коректне врахування умови електронейтральності в рамках моделі “желе” для системи електронів через доведений факт, який полягає в тому, що ширина потенціальної ями є більшою від товщини металу. У різних розвідках показано, що таке врахування веде до отримання коректних значень для хімічного потенціалу μ та осциляційної картини його поведінки в залежності від товщини металу. Оскільки від хімічного потенціалу залежать значення хвильового вектора Фермі, який в свою чергу визначає число рівнів розмірного квантування в металі. Застосування описаної моделі до розрахунків параметрів системи показали значне покращення узгодження із експериментальними даними для $SiO_2/Ag/Si$ та, більш того, показано, що частотний спектр плазмона повторює залежну від товщини характерну осциляційну поведінку хімічного потенціалу.

Додатково показано, що характер такої картини в значній мірі залежить від концентрації вільних носіїв заряду в металі. Також відзначається помітне затухання амплітуди осциляцій зі збільшенням товщини металевієї плівки.

Подальше удосконалення моделі полягає у спробі врахувати вплив електрон-електронної взаємодії (кулонівських кореляцій). В умовах описаних раніше досліджено електронну систему та знайдено значення для хімічного потенціалу з врахуванням цієї взаємодії. Варто тут одразу зазначити, що розгляд впливу кореляцій обмежується тут їх вкладом у хімічний потенціал та нехтується цим вкладом в усі інші параметри системи. Отримані результати математичного моделювання дають добре узгодження з експериментальними даними передовсім за рахунок того, що розраховані значення для хімічного потенціалу атомно-тонкої металевієї плівки найкраще відповідають реальним даним. Відмічена вище осциляційна поведінка частотного спектру спостерігається і в цих умовах, але характеризується значно більшою амплітудою в залежності від товщини металевієї плівки та, відповідно, кількості рівнів розмірного квантування.

Суть дослідження поширення плазмон-поляритонних хвиль в структурах діелектрик/метал/діелектрик в цій роботі полягає у послідовному процесі побудови математичної моделі, починаючи від розгляду металевого прошарку як 2D провідної системи та застосування класичних і квазікласичних моделей провідності до врахування в функції діелектричної проникності квантових ефектів, які раніше не брались до уваги. Такий підхід дозволив показати як і в яких умовах достатнім є використання класичних підходів і які є їх межі застосування, та при яких умовах варто ускладнювати математичну модель ефектами, які важливі тільки для систем із певною розмірністю. Показано, що врахування просторової дисперсії та коректне застосування умови електронейтральності для наближення незалежних електронів дає помітно краще узгодження з експериментом та виявляє специфічну характерну поведінку частотного спектру. Відхід же від розгляду електронної системи як невзаємодіючої, а точніше, врахування кулонівських кореляцій, дає найкраще узгодження з-поміж усіх розроблених у цій роботі моделей. Основним практичним здобутком проведеного дослідження є встановлення факту, що для атомно-тонких металевих плівок необхідно враховувати квантову

природу поведінки електронів в металі і це дозволяє краще розуміти природу досліджуваного процесу та отримати якісно та кількісно кращі результати.

Ключові слова: плазмоніка, поверхневі плазмон-поляритони, дисперсійне рівняння, діелектрична проникність металу, атомно-тонка металева плівка, математичне моделювання поширення поверхневих плазмон-поляритонів, електронейтральність, кулонівські кореляції.

ABSTRACT

Polovyi V. Ye. Modeling of plasmon-polariton propagation in stratified structures. – Qualification scientific work on the rights of a manuscript.

The thesis for the Philosophy Doctor (Ph.D.) degree in specialty 11 “Applied Mathematics” (11 “Mathematics and Statistics”). – Lviv Polytechnic National University, Lviv, Ukraine, 2021.

The dissertation is devoted to the research of the process of propagation of surface plasmon-polariton waves in heterogeneous dielectric/metal/dielectric structures at the dielectric/metal boundary and the influence of metal layer thickness, electroneutrality conditions, and Coulomb correlations of electrons in a metal.

Various metal layers, such as silver (*Ag*), gold (*Au*), aluminum (*Al*), which are characterized by a high concentration of charge carriers, are considered by mathematical modeling of the dependence of frequency on the wave vector. These metal layers are sandwiched between dielectrics, which may be a vacuum, *SiO*₂ or other polymeric compounds and the like. To find the frequency spectrum (or dispersion spectrum) in all cases, we initially solved the system of Maxwell’s macroscopic equations for each medium. Applying the integral Fourier transform first for the time variable t and then for the coordinates (x, y) in the plane of the metal layer results in a system of wave equations. In cases when we consider the metal layer as a two-dimensional electronic system whose dielectric constant depends only on the time variable/frequency (the system is characterized only by a time dispersion), the wave equation in the metal region has an analytical solution. In cases when the dielectric constant of the metal is also a function of coordinates (the system is characterized by a spatial dispersion) to obtain an analytical solution, it is necessary to formulate additional model assumptions. The obtained solutions in each of the mentioned cases are connected using the conditions of continuity of electromagnetic fields at the boundaries of the media. From these conditions, we obtain the dispersion relation for the calculation of values of a frequency spectrum of plasmons.

To find the frequency spectrum of plasmon waves it is important to model the metal layer [80]. We used the classical Drude-Lorentz theory for this purpose in

a significant number of works on the study of the propagation of plasmon waves. Despite all the shortcomings of this model [80, 81] in particular, the neglect of the interaction of electrons and lattice ions, the assumption that the free path of electrons does not depend on temperature, this model for metal layers with thickness bigger than nanoscale gives a fairly good agreement with experimental data. During mathematical modeling in the first stage, the plasmon spectrum was calculated for the Drude model and compared with the results obtained for the quantum Random Phase Approximation (RPA) model. In this case, we consider the metal layer as a 2D electronic system with area that is infinitely big compared to the size of the studied system along OZ . The simulation results showed that for small values of the wave vector the values of the frequency spectrum in both cases are almost the same but differ significantly for larger values of the wave vector. These results are consistent with the results obtained in other works reviewed in this study.

The next goal of this work was to study the effect of a spatial dispersion on the behavior of the frequency spectrum, in particular for the case of atomically thin metal films. In this model, we considered the metal as an electron gas placed in a potential well, the walls of which are dielectric media. This model allows us to investigate the dependence of the dielectric constant on the z coordinate and take into account the dependence of the frequency spectrum behavior on the thickness of the metal. Since in the proposed mathematical model, the propagation of plasmon waves, as already noted, the dispersion relation depends on the solution of the wave equation. Then to obtain analytical solutions for these equations, we used the expansion of the magnetic field strength into a series on powers of a small parameter. This parameter is the ratio between the real dielectric constant and its average value calculated along the z coordinate. Mathematical modeling for the structure with parameters that correspond to the heterogeneous plasmonic configuration $SiO_2/Ag/Si$ show that for metal films with a thickness that is measured in atomic monolayers, the results for our model have better agreement with experimental data compared to the Drude model and with the increasing number of monolayers goes from the bottom to the values calculated for the Drude model with the same physical parameters for the areas of the studied structures.

Although the construction of the model, which allowed to study the influence

of metal thickness on the frequency spectrum of plasmon waves, brought the simulation results closer to the experimental data, further improvement of the simulation results was necessary. To do this, we considered additional model assumptions as to which physical phenomena and processes can better describe the object of study and improve the results obtained. It should be noted that all the following physical processes are quantum in nature and are related to the behavior of electrons in the metal system and their penetration into the dielectrics zones at the boundaries of contact with the metal layer.

Numerous studies have shown that for nanoscale atomic-thin metal films, quantum-dimensional effects play a significant role in the behavior of the metal system, so it is logical to assume that these effects will also affect the behavior of the plasmon wave propagating on the metal surface. It was initially proposed to consider the effect of electron penetration into the dielectric layer due to the correct consideration of the electroneutrality condition in the "jellium" model for the electron system due to the proven fact that the width of a potential well is greater than the metal thickness. Various investigations have shown that such consideration yields the correct values for the chemical potential μ and the oscillating picture of its behavior depending on the thickness of the metal. Because the values of the Fermi wave vector depend on the chemical potential, which in turn determines the number of levels of dimensional quantization in the metal. The application of the described model to the calculations of the system parameters showed a significant improvement in the agreement with the experimental data for *SiO₂/Ag/Si* and, moreover, it was shown that the plasmon frequency spectrum repeats the thickness-dependent characteristic oscillating behavior of the chemical potential. Additionally, it is shown that the nature of such a picture largely depends on the concentration of free charge carriers in the metal. There is also a noticeable attenuation of the amplitude of oscillations with increasing thickness of the metal film.

Further improvement of the model is an attempt to study the influence of electron-electron interaction (Coulomb correlations). Under the conditions described earlier, the electronic system was investigated and the value for the chemical potential was found taking into account this interaction. It should be noted here that the consideration of the influence of correlations is limited here by

their contribution to the chemical potential and we neglect this contribution to all other parameters of the system. The obtained results give good agreement with the experimental data, primarily because the calculated values for the chemical potential of the atomically thin metal film best correspond to the experimental data. The above-mentioned oscillating behavior of the frequency spectrum is observed in these conditions but is characterized by a much larger amplitude depending on the thickness of the metal film and, accordingly, the number of levels of dimensional quantization.

The essence of the study of the propagation of plasmon-polariton waves in dielectric/metal/dielectric structures in this work is the sequential process of building a mathematical model, starting from the consideration of the metal layer as a 2D conducting system and the application of classical and quasi-classical conductivity models, which were not previously taken into account. This approach allowed us to show how and under what conditions the use of classical approaches is sufficient and what are their limits of application, and under what conditions it is necessary to complicate the mathematical model with effects that are important only for systems with a certain dimension. Showed that taking into account the spatial dispersion and the correct application of the electroneutrality condition for the approximation of independent electrons gives a significantly better agreement with the experiment and reveals a specific characteristic behavior of the frequency spectrum. The departure from the consideration of the electronic system as non-interacting, or rather, taking into account Coulomb correlations, gives the best agreement among all the models developed in this paper. The main practical achievement of the study is to establish the fact that for atomically thin metal films it is necessary to take into account the quantum nature of the behavior of electrons in metal and it allows to better understand the nature of the process and get better and quantitatively better results. The main practical achievement of the study is to establish the fact that for atomically thin metal films it is necessary to take into account the quantum nature of the behavior of electrons in the metal and it leads to a better understanding of the nature of the process and yields qualitatively and quantitatively better results.

Keywords: plasmonics, surface plasmon polaritons, dispersion relation, dielectric constant of metal, atomically thin metal film, mathematical modeling

of surface plasmon-polariton propagation, electroneutrality, Coulomb correlations.

Список публікацій здобувача

1. Kostobij P., Polovyi V., Pavlysh V., Nevinskyi D. SPP waves in “dielectric-metal-dielectric” structures: influence of exchange correlations // Math. Model. Comput. 2018. Vol. 4, no. 2, P.148-155.
2. Kostobij P., Polovyi V. Surface plasmon polaritons in dielectric/metal/dielectric structures: metal layer thickness influence // Math. Model. Comput. 2019. Vol.6, no.1, P. 109-115.
3. Kostobij P., Markovych B., Polovyi V. Influence of the electroneutrality of a metal layer on the plasmon spectrum in dielectric-metal-dielectric structures // Math. Model. Comput. 2019. Vol.6, no.2, P. 297-303.
4. Kostobij P., Markovych B., Polovyi V. Frequency spectrum of surface plasmon-polariton waves: influence of Coulomb correlations // Math. Model. Comput. 2020. Vol.7, no.1, P. 140-145.

Наукові праці, які засвідчують апробацію матеріалів дисертації:

5. Kostobij P., Polovyi V. Plasmon-polariton waves in the structures “dielectric-metal-dielectric”: Experiment and modeling // XIth International Scientific and Technical Conference Computer Sciences and Information Technologies (CSIT), 2016, P. 208-211.
6. Костробій П. П., Польовий В. Є. Поширення плазмон-поляритонних хвиль в структурах діелектрик-метал-діелектрик // Сучасні проблеми математичного моделювання, обчислювальних методів та інформаційних технологій, 2-4 березня 2018 року, Рівне, Україна, 2018, С. 57-58.
7. Kostobij P., Polovyi V. Influence of the thickness of a metal nanofilm on the spectrum of surface plasmons // IEEE 15th International Conference on the Experience of Designing and Application of CAD Systems (CADSM), 26 Feb.-2 March 2019, Polyana, Ukraine, 2019, P. 1-4.

8. Kostobiy P., Polovyi V. The influence of the electroneutrality of the metal layer on the plasmon spectrum in "dielectric-metal-dielectric" structures // Modeling, Control and Information Technologies: Proceedings of International Scientific and Practical Conference, (3), 14-16 November, Rivne, Ukraine, 2019, P. 141-144.
9. Kostobiy P., Polovyi V. The behaviour of the surface plasmon spectrum in heterogeneous structures depending on the thickness of the metal layer // Nanotechnology and nanomaterials (NANO-2019) : international research and practice conference, 27–30 August 2019, Lviv, Ukraine : book of abstracts, 2019, P. 533.
10. Kostobiy P., Polovyi V. The behaviour of the surface plasmon spectrum in heterogeneous structures depending on the thickness of the metal layer // Nanotechnology and nanomaterials (NANO-2020) : international research and practice conference, 26–29 August 2020, Lviv, Ukraine : book of abstracts, 2020, P. 501.
11. Костробій П. П., Маркович Б. М., Польовий В. Є. Частотний спектр плазмон-поляритонних хвиль: вплив кулонівських кореляції // 16-та Відкрита наукова конференція Інституту прикладної математики та фундаментальних наук (ІМФН) : збірник матеріалів конференції, 6–7 лютого, Львів, 2020 р, 2020, С. 85–86.
12. Kostobij P., Polovyi V. Markovych B. Modeling of a Surface Plasmons Frequency Spectrum in Dielectric/metal/dielectric Structures: the Influence of the Coulomb Correlations // IEEE 15th International Conference on Computer Sciences and Information Technologies (CSIT), 23-26 Sept. 2020, Zbarazh, Ukraine, 2020, P. 1-4.
13. Kostrobij P., Markovych B., Polovyi V. Frequency spectrum of surface plasmon-polariton waves: influence of Coulomb correlations. // XXII International Seminar on Physics and Chemistry of Solids, June 17-19, 2020 Lviv, Ukraine, P. 23.

14. Kostrobij P., Markovych B., Polovyi V. Study of SSPs Waves Frequency Spectrum in Atomically-Thin Films: Case of Electron-Electron Interaction. // IEEE 11th International Conference “Nanomaterials: Applications & Properties” (IEEE NAP – 2021), September 5-11, 2021 Odesa, Ukraine.