

Вплив товщини нанорозмірних шарів метало-діелектричної структури на її оптичні характеристики

Гетманчук^f В. В., ORCID [0000-0002-1894-4005](https://orcid.org/0000-0002-1894-4005)

Мачулянський^s О. В., д.т.н. доц., ORCID [0000-0003-0057-9844](https://orcid.org/0000-0003-0057-9844)

Кафедра мікроелектроніки, me.kpi.ua

Національний технічний університет України

"Київський політехнічний інститут імені Ігоря Сікорського" ROR [00syn5v21](https://ror.org/00syn5v21)

Київ, Україна

Анотація—В роботі було проведено дослідження впливу товщини шарів метало-діелектричної структури на її оптичні характеристики. Моделювання проводилося для конфігурації Кречмана, яка представляє собою скляну призму на яку нанесено багатшарову метало-діелектричну структуру. В якості метало-діелектричної структури було використано AuSiO₂, а в якості джерела зовнішнього електромагнітного випромінювання застосовано лазерний промінь з довжиною хвилі 633 нм. Товщина плівки золота змінювалася від 1 до 60 нанометрів. Найнижче значення коефіцієнта відбивання досягається на товщині 50 нм. Товщина плівки Діоксиду кремнію змінювалася від 1 до 30 нм. При товщинах діелектричного шару до 10 нм, вплив її на оптичні характеристики є незначним.

Ключові слова — ППР; біосенсор; діелектрик; тонка плівка; золото.

I. ВСТУП

Тонкі плівки широко використовуються в конструкціях сучасних сенсорів, зокрема у біосенсорах, в якості чутливого елемента.

Біосенсор — це пристрій, який виявляє зміну фізичних властивостей, яка виникає, коли іммобілізована біологічна молекула, така як антитіло або білок, зв'язується з досліджуваною речовиною [1].

Розроблено та використовується низка методів для визначення взаємодії між біорецепторами та речовинами що досліджуються, багато з яких базуються на принципі поверхневого плазмонного резонансу (ППР).

Біосенсори на основі ППР широко використовуються для аналізу біологічного та навколишнього середовища. В залежності від параметрів компонент чутливого елемента, біосенсор використовується для аналізу різних зразків, від білків до вірусів [2, 3].

ППР сенсори вимірюють зміну оптичної відбивної здатності тонкої металевої плівки. В якості металевої плівки широко використовують благородні метали, зокрема золото. Використання металевих плівок із золота обумовлено його оптичними властивостями та високою хімічною стабільністю [4, 5, 6]. Також оптичні сенсори на основі ППР, характеризуються простотою конструкції, високою точністю та швидкодією [7, 8].

Проте для оптичних ППР сенсорів на таких структурах має місце ряд не вирішених задач, зокрема,

значні габарити система та висока вартість конструкції [9]. Також необхідно відзначити, що при розробці таких наноструктурних елементів, не досліджено в повній мірі взаємозв'язок оптичних характеристик метало-діелектричної структури з її конструктивними технологічними параметрами окремих компонент. Крім того складність встановлення такого взаємозв'язку обумовлена особливостями електромагнітних властивостей нанорозмірних структур [10]. Зокрема, спектральні та розмірні характеристики оптичних параметрів нанорозмірних компонент відрізняються від їх значень в макроскопічних об'ємах [11, 12].

Тому для вирішення цих задач метою даної роботи є встановлення впливу конструктивних параметрів метало-діелектричної структури на її оптичні характеристики.

II. МОДЕЛЬ КРЕЧМАНА

Для моделювання метало-діелектричної структури було обрано модель Кречмана, яка ґрунтується на явищі поверхневого плазмонного резонансу [13]. Вона описує структуру в якій тонкі плівки наносяться на скляну призму.

Поверхневий плазмонний резонанс — це резонансне коливання електронів на межі розділу між середовищами із негативною та позитивною діелектричною проникністю, стимульоване зовнішнім електромагнітним (ЕМ) лазерним випромінюванням [14, 15]. Умовою збудження плазмону є від'ємна дійсна частина діелектричної проникності металу та рівність



вектору імпульсу поверхневого плазмону і проекції вектору імпульсу фотона.

У оптичній конфігурації Кречмана (рис. 1) промінь електромагнітного (ЕМ) лазерного випромінювання з хвильовим вектором k проходить через скляну призму і падає під певним кутом на тонку нанорозмірну плівку металу, яка нанесена на одну із граней скляної призми. Частина світла проходить в метал і поширюється у вигляді загасаючої електромагнітної хвилі. На поверхні металу виникає поверхнева електромагнітна хвиля з хвильовим вектором k_{sp} . Досліджувана речовина знаходиться на поверхні тонкої плівки.

Коефіцієнт відбивання для такої структури відповідно до [16], визначається співвідношенням:

$$R = \frac{|r_{12} + r_{23} \exp(-2k_2 d)|^2}{|1 + r_{12} r_{23} \exp(-2k_2 d)|^2} \quad (1)$$

де, k – хвильовий вектор, d – товщина металічного шару, r_{ij} – коефіцієнт відбиття на межі між двома середовищами.

$$r_{ij} = \frac{\frac{k_i}{\varepsilon_i} - \frac{k_j}{\varepsilon_j}}{\frac{k_i}{\varepsilon_i} + \frac{k_j}{\varepsilon_j}} \quad (2)$$

де, ε – діелектрична проникність середовища, $i, j = 1, 2, 3$, в залежності від середовища.

$$k_i = k_0 \left[\varepsilon_i - \varepsilon_1 \sin^2 \theta \right]^{\frac{1}{2}} \quad (3)$$

де $k_0 = \omega/c$, $\sin \theta$ - синус кута падіння p – поляризованого світла.

Оскільки з часом металева плівка деградує під впливом досліджуваних речовин, особливо у агресивних середовищах, рівень відгуку такої конструкції зменшується [17].

Для вирішення цього недоліка було запропоновано нанести на нанорозмірну плівку металу діелектричний шар, наприклад діоксид кремнію, графен або полімери [18]. Встановлення впливу діелектричного шару на параметри елемента також є одним із завдань проведеного дослідження.

Для моделювання було використано програму Winspall (Resonant Technologies GmbH) [19]. Дане забезпечення було апробоване та підтвержене експериментально в лабораторії Інститута Макса Планка (MPI, Фрамсгайм, Німеччина).

Для моделювання використано наступні конструкції:

- 1) скляна призма / металевий шар / повітря;
- 2) призма / металевий шар / шар діелектрика / повітря.

В якості металічної компоненти було обрано золото, що обумовлено його оптичними властивостями. Діелектричною складовою було обрано діоксид

кремнію, що обумовлений його конструктивно-технологічними особливостями. Оптичні параметри компонент наведені у таблиці 1.

Моделювання проведено для випадку дії на конструкцію досліджуваного сенсорного елемента зовнішнього електромагнітного (ЕМ) — лазерного випромінювання довжиною хвилі $\lambda = 633$ нм.

Задачею моделювання являлося. встановлення впливу конструктивних параметрів нанорозмірних компонент, зокрема, товщини метало-діелектричної структури, на їх оптичні характеристики

III. РЕЗУЛЬТАТИ МОДЕЛЮВАННЯ

На основі моделі Кречмана розраховано коефіцієнт відбивання від структури скляна призма / нанорозмірна плівка золота/ повітря при різних кутах падіння зовнішнього ЕМ випромінювання. Товщина плівки золотої варіювалася від 1 до 60 нм.

На рис. 2 наведено залежність коефіцієнта відбивання від кута падіння ЕМ випромінювання у структурі призма/ повітря. Видно, що при кутах падіння до 37° коефіцієнт відбивання (R) має значення менше 5%, а при кутах падіння більше 40° , порядку 94%.

На рис. 3 представлено залежності коефіцієнта відбивання від товщини плівки золота для структури скляна призма/ плівка золота/ повітря, при різних значеннях кута падіння зовнішнього ЕМ випромінювання $\lambda = 633$ нм.

ТАБЛИЦЯ 1 ОПТИЧНІ ПАРАМЕТРИ

Матеріал	Коефіцієнт відбивання, n	Коефіцієнт згасання, k
Скляна призма	1,51	0
Золото [20]	0,178	3,07
Діоксид кремнію [21]	1,46	0
Повітря	1	0

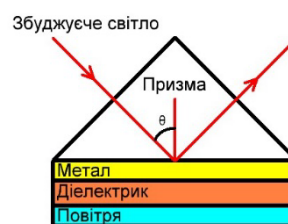


Рис. 1 Модель Кречмана

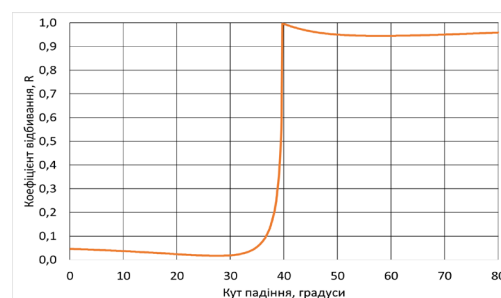


Рис. 2 Залежність коефіцієнта відбивання від кута падіння електромагнітного випромінювання $\lambda = 633$ нм, для структури скляна призма / повітря.

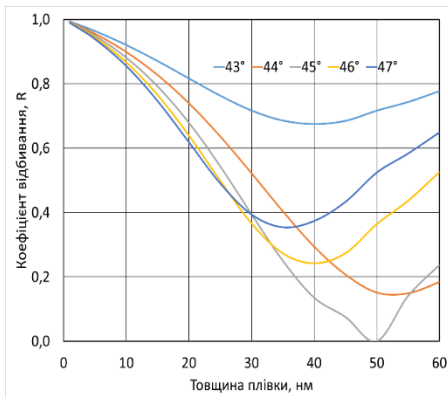


Рис. 3 Залежність коефіцієнта відбивання від товщини плівки золота при значеннях кута падіння електромагнітного випромінювання $\lambda = 633$ нм: 43° , 44° , 46° , 47° , для структури скляна призма / плівка золота / повітря.

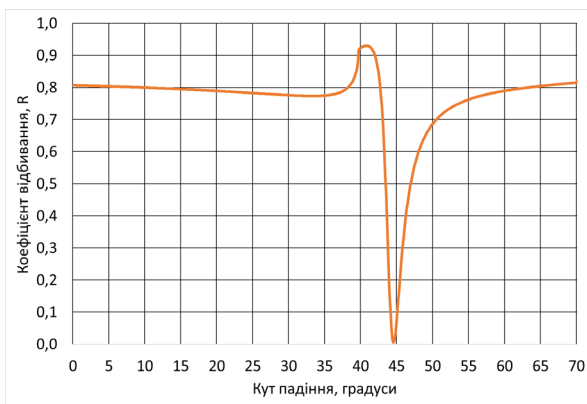


Рис. 4 Залежність коефіцієнта відбивання від кута падіння електромагнітного випромінювання $\lambda = 633$ нм, для структури скляна призма тонка плівка золота товщиною 50 нм.

З рис. 3 видно, що при товщині нанорозмірних шарів золота до 30 нм, значення коефіцієнта відбивання зменшується. При подальшому збільшенні товщини плівки коефіцієнт відбивання при досягненні мінімального значення починає зростати. Найнижчі значення коефіцієнта відбивання спостерігається при куті падіння лазерного променю 45° , та товщині нанорозмірної плівки золота 50 нм, в даному випадку відбувається повне внутрішнє відбивання.

На рис. 4 наведено залежності коефіцієнта відбивання від кута падіння зовнішнього ЕМ випромінювання структури скляна призма/ плівка золота/ повітря.

Для конструкції з товщиною металевої плівки 50 нм, при збільшенні кута падіння приблизно до 39° градусів спостерігається лінійна залежність від коефіцієнта відбивання, а при збільшенні кута до 45° градусів спостерігається явище поверхневого плазмонного резонансу, діапазон збудження структури становить приблизно 2 градуси.

Для встановлення впливу діелектричного шару на оптичні характеристики метало-діелектричної структури, проведено дослідження конструкції в якій, на тонку плівку золота товщиною 50 нм., нанесено діелектричну плівку діоксиду кремнію. Товщина діелектричної компоненти змінювалася від 1 до 30 нм.

На рис. 5-8 представлені залежності для структури скляна призма / шар Au / шар SiO_2 / повітря, при різних значеннях товщини SiO_2 .

Аналіз кривих зображених на рис. 5-8 показує, що зі збільшенням товщини діелектричного шару збільшується кут виникнення ефекту ППР (далі кут збудження) та діапазон в якому структура не реагує з повітрям (далі діапазон збудження структури). Зокрема, для структури з товщиною плівки SiO_2 1 нм, діапазон збудження становить приблизно 3 градуси, та кут збудження дорівнює приблизно 45° , для товщини плівки SiO_2 3 нм, діапазон збудження становить приблизно 4 градуси та кут збудження дорівнює приблизно 46° , для товщини плівки SiO_2 10 нм, діапазон збудження становить приблизно 5 градусів та кут збудження дорівнює приблизно 47° , для товщини плівки SiO_2 30 нм, діапазон збудження становить приблизно 10 градусів та кут збудження дорівнює приблизно 54° . Така закономірність впливає на функціональні параметри застосування даної структури, в якості сенсорного елемента, зокрема на її чутливість. Проте зі збільшення товщини діелектричного шару (SiO_2) від 1 до 30 нм, коефіцієнт відбивання при більшій товщині має нижчі значення, що призводить до похибки та зменшення точності вимірювання. Тому функціональні параметри сенсорного елемента на основі даної структури потребують додаткових дослідження та аналізу.

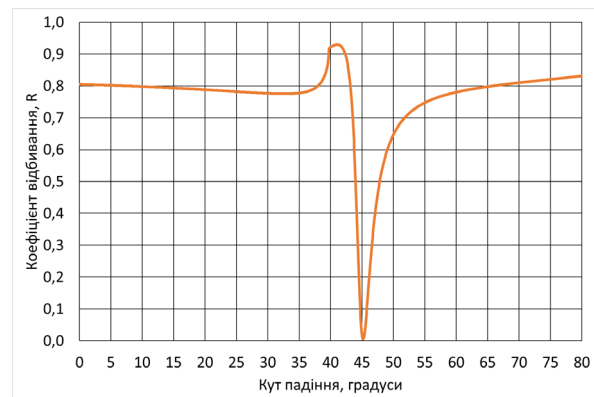


Рис. 5 Залежність коефіцієнта відбивання від кута падіння ЕМ випромінювання $\lambda = 633$ нм, для структури скляна призма / плівка золота товщиною 50 нм / плівка SiO_2 1 нм.

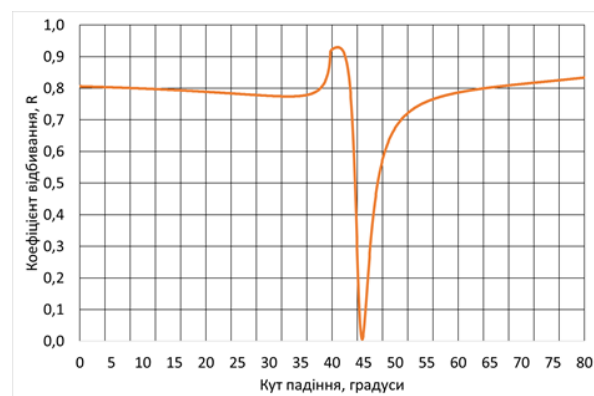


Рис. 6 Залежність коефіцієнта відбивання від кута падіння ЕМ випромінювання $\lambda = 633$ нм, для структури скляна призма / плівка золота товщиною 50 нм / плівка SiO_2 3 нм.

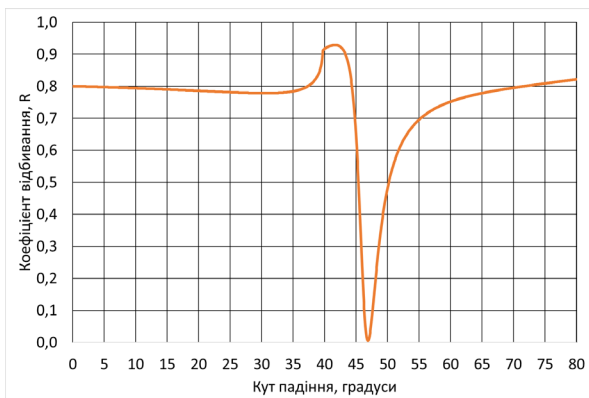


Рис. 7 Залежність коефіцієнта відбивання від кута падіння ЕМ випромінювання $\lambda = 633$ нм, для структури скляна призма / плівка золота товщиною 50 нм / плівка SiO_2 10 нм.

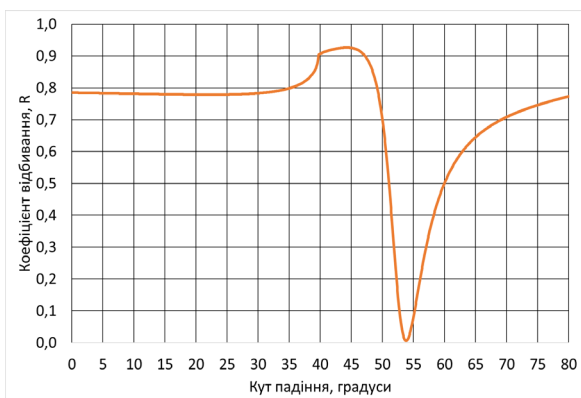


Рис. 8 Залежність коефіцієнта відбивання від кута падіння ЕМ випромінювання $\lambda = 633$ нм, для структури скляна призма / плівка золота товщиною 50 нм / плівка SiO_2 30 нм.

ВИСНОВКИ

Встановлено, вплив товщини нанорозмірних шарів метало-діелектричної структури на її оптичні характеристики, для моделі Кречмана (конструкція скляна призма / шар Au / шар SiO_2 / повітря), при дії зовнішнього електромагнітного випромінювання довжиною хвилі 633 нм

Встановлено наступні залежності:

- Для плівки золота повне внутрішнє відбивання відбувається на товщинах 48-52 нм, найнижче значення коефіцієнта відбивання при товщині золотої плівки 50 нм. Кут збудження становить 45 градусів, діапазон приблизно 2 градуси.
- Товщина діелектричної плівки впливає на умови виникнення ефекту ППР, проте має вплив на її оптичні характеристики. Зі збільшенням товщини зростає чутливість конструкції проте зменшується точність вимірювання, оптимальною товщина становить 10 нм. Кут збудження становить 47 градусів, діапазон приблизно 4 градуси, точність зменшується несуттєво.

В дослідженні використано макроскопічні значення параметрів нанорозмірних компонент структури, але відомо, що їх реальні параметри значно відрізняються від макроскопічних [22].

Для підвищення точності моделювання метало-діелектричної структури в подальших дослідженнях необхідно буде врахувати розмірні зміни оптичних параметрів нанорозмірного металевого компонента.

ПЕРЕЛІК ПОСИЛАНЬ

- [1] J. A. Ribeiro, M. G. F. Sales та C. M. Pereira, "Electrochemistry combined-surface plasmon resonance biosensors: A review," *Trends in Analytical Chemistry*, № 157, 2022. DOI: [10.1016/j.trac.2022.116766](https://doi.org/10.1016/j.trac.2022.116766)
- [2] B. Liedberg, C. Nylander та I. Lunström, "Surface plasmon resonance for gas detection and biosensing," *Sensors and Actuators*, 1983, pp. 299-304. DOI: [10.1016/0250-6874\(83\)85036-7](https://doi.org/10.1016/0250-6874(83)85036-7)
- [3] C. M. Miyazaki, F. M. Shimizu та M. Ferreira, "Surface Plasmon Resonance (SPR) for Sensors and Biosensors," pp. 183-200, 2017. DOI: [10.1016/B978-0-323-49778-7.00006-0](https://doi.org/10.1016/B978-0-323-49778-7.00006-0)
- [4] G. Wang, C. Wang та S. Sun, "An optical waveguide sensor based on mesoporous silica films with a comparison to surface plasmon resonance sensors," *Sensors and Actuators B Chemical*, pp. 3400-3408, 2018. DOI: [10.1016/j.snb.2017.09.169](https://doi.org/10.1016/j.snb.2017.09.169)
- [5] L. Wang, Y. Sun, J. Wang, X. Zhu, F. Jia, Y. Cao, X. Wang, H. Zhang та D. Song, "Sensitivity enhancement of SPR biosensor with silver mirror reaction on the Ag/Au film," *Talanta*, pp. 265-269, 15 April 2009. DOI: [10.1016/j.talanta.2008.11.019](https://doi.org/10.1016/j.talanta.2008.11.019)
- [6] O. V. Machulianskyi, "Specific Electric Polarizability of Copper Nanoparticles in the Optical Range of the Spectrum," *Microsystems, Electronics and Acoustics*, pp. 1-9, 2018. DOI: [10.20535/2523-4455.2018.23.2.130732](https://doi.org/10.20535/2523-4455.2018.23.2.130732)
- [7] J. Homola, S. S. Yee та G. Gauglitz, "Surface plasmon resonance sensors: review," *Sensors and Actuators B Chemical*, pp. 3-15, January 1999. DOI: [10.1016/j.talanta.2008.11.019](https://doi.org/10.1016/j.talanta.2008.11.019)
- [8] S. Rahman, K. A. Rikta, L. B. Bashar та S. Anower, "Numerical analysis of graphene coated surface plasmon resonance biosensors for biomedical applications," *Optik - International Journal for Light and Electron Optics*, pp. 384-390, 2018. DOI: [10.1016/S0925-4005\(98\)00321-9](https://doi.org/10.1016/S0925-4005(98)00321-9)
- [9] V. Amendola, O. M. Bakr, and F. Stellacci, "A Study of the Surface Plasmon Resonance of Silver Nanoparticles by the Discrete Dipole Approximation Method: Effect of Shape, Size, Structure, and Assembly," *Plasmonics*, vol. 5, no. 1, pp. 85-97, Jan. 2010. DOI: [10.1007/s11468-009-9120-4](https://doi.org/10.1007/s11468-009-9120-4)
- [10] B. B. Babych, Machulianskyi, O. V та Machulianskyi V. O., "Modeling of metal-dielectric nanocomposite coatings with ferromagnetic inclusions for electromagnetic protection of electronic devices," *Visnyk of Kherson National Technical University*, pp. 104-108, 2018. DOI: [10.1109/ELNANO.2014.6873955](https://doi.org/10.1109/ELNANO.2014.6873955)
- [11] B. B. Babych, O. V. Machulianskyi та V. O. Machulianskyi, "Determination of the efficiency factors of the absorption and scattering of nickel nanoparticles," *Informatyka, Automatyka, Pomiar w Gospodarce i Ochronie Srodowiska*, 2018. DOI: [10.5604/01.3001.0010.8541](https://doi.org/10.5604/01.3001.0010.8541)



- [12] O. V. Machulianskyi, "Optical characteristics of nanodimensional particles of chrome," *HERALD OF KHMELNYTSKYI NATIONAL UNIVERSITY*, № 257, pp. 203-207, 2018.
- [13] E. Kretschmann and H. Raether, "Notizen: Radiative Decay of Non Radiative Surface Plasmons Excited by Light", *Zeitschrift für Naturforschung A*, vol. 23, no. 12, pp. 2135–2136, Dec. 1968. DOI: [10.1515/zna-1968-1247](https://doi.org/10.1515/zna-1968-1247)
- [14] F. Eslami-Kaliji та S. Z. Mirahmadi-Zare, "A label-free SPR biosensor for specific detection of TLR4 expression; introducing of 10-HDA as an antagonist," *International Journal of Biological Macromolecules*, pp. 142-149, 2022. DOI: [10.1016/j.ijbiomac.2022.07.035](https://doi.org/10.1016/j.ijbiomac.2022.07.035)
- [15] X. Lu, "Electrical SPR biosensor with thermal annealed graphene oxide: Concept of highly sensitive biomolecule detection", *Biosensors and Bioelectronics: X*, vol. 11, p. 100152, Sep. 2022. DOI: [10.1016/j.biosx.2022.100152](https://doi.org/10.1016/j.biosx.2022.100152)
- [16] F. Eduardo та S. C. Oliveira, "Hydrogen Detection Using Surface Plasmon Resonance in Palladium Films," in *Microwave and Optoelectronics Conference*, 2009. DOI: [10.1109/IMOC.2009.5427576](https://doi.org/10.1109/IMOC.2009.5427576)
- [17] H. V. Dorozinska, "Influence of Temperature on the Measuring Accuracy of Devices Based on Surface Plasmon Resonance Phenomenon," *Journal of Sensor Technology*, pp. 20-25, 2021. DOI: [10.4236/mi.2018.71001](https://doi.org/10.4236/mi.2018.71001)
- [18] S. Kamila, B. Mohanty та S. Das, "Electrochemical Sensing Platform Based on Graphene-Metal/Metal Oxide Hybrids for Detection of Metal Ions Contaminants," in *Fundamentals and Sensing Applications of 2D Materials*, Colloids and Materials Chemistry Department, CSIR-Institute of Minerals and Materials Technology, Bhubaneswar, India; Academy of Scientific & Innovative Research, New Delhi, India, 2019, p. January. DOI: [10.1016/B978-0-08-102577-2.00008-7](https://doi.org/10.1016/B978-0-08-102577-2.00008-7)
- [19] RES-TEC, "Surface Plasmon Resonance – The RES-TEC quick datasheet," 2022. Available: <http://res-tec.de/pdf/res-tec-optical-constants-database.pdf>.
- [20] D. I. Yakubovsky, A. V. Arsenin, Y. V. Stebunov, D. Y. Fedyanin та V. S. Volkov, "Optical constants and structural properties of thin gold films," *Opt. Express*, № 25, 2017. DOI: [10.1364/OE.25.025574](https://doi.org/10.1364/OE.25.025574)
- [21] L. Gao, F. Lemarchand та M. Lequime, «Exploitation of multiple incidences spectrometric measurements for thin film reverse engineering,» *Opt. Express*, № 20, 2012. DOI: [10.1364/OE.20.015734](https://doi.org/10.1364/OE.20.015734)
- [22] O. V. Machulianskyi, "Optical properties of nickel nanoparticles in systems with a statistically inhomogeneous structure," *Microsystems Electronics and Acoustics*, vol. 23, pp. 6-15, 2018. DOI: [10.20535/2523-4455.2018.23.1.126231](https://doi.org/10.20535/2523-4455.2018.23.1.126231)

Надійшла до редакції 07 квітня 2022 року

Прийнята до друку 26 серпня 2022 року



The Effect of the Thickness of Nanoscale Layers of the Metal-Dielectric Structure on Its Optical Characteristics

V. V. Hetmanchuk^f, ORCID [0000-0002-1894-4005](https://orcid.org/0000-0002-1894-4005)

O. V. Machulianskyi^s, Dr.Sc.(Eng.) Assoc.Prof., ORCID [0000-0003-0057-9844](https://orcid.org/0000-0003-0057-9844)

Department of microelectronics, me.kpi.ua

National Technical University of Ukraine "Igor Sikorsky Kyiv Polytechnic Institute" ROR [00syn5v21](https://ror.org/00syn5v21)

Kyiv, Ukraine

Abstract—A biosensor is a device which uses a mixture of biological and physicochemical components to detect molecular-level interactions. Essentially, biosensors detect the change in physical properties which occur when an immobilized biological molecule, such as an antibody or a protein, binds to their target analyte. A number of methods have been developed to determine interactions between bioreceptors and their analytes, many of which are based on the principle of Surface Plasmon Resonance, or SPR. The ubiquity of SPR comes from its inherent advantages; it allows real time, highly sensitive monitoring of a wide range of molecular interactions, without the requirement for additional labelling of samples. Surface Plasmon Resonance is caused by the interaction of electromagnetic radiation and the free-flowing cloud of electrons within a metal, a process which induces electromagnetic waves and, under certain conditions, resonance effects. Alterations in the physical conditions at the surface have a significant effect on this resonance, and the detection of these changes form the basis of the SPR biosensor.

In the work, the effect of the thickness of the layers of the metal-dielectric structure on its optical characteristics was studied. The simulation was carried out for the Krechman configuration, which is a glass prism on which a multilayer metal-dielectric structure is applied. AuSiO₂ was used as a metal-dielectric structure, and a laser beam with a wavelength of 633 nm was used as a source of external electromagnetic radiation. The thickness of the gold film varied from 1 to 60 nanometers. The lowest value of the reflection coefficient is reached at a thickness of 50 nm. The thickness of the silicon dioxide film varied from 1 to 30 nm. When the thickness of the dielectric layer is up to 10 nm, its influence on the optical characteristics is insignificant.

Macroscopic values of parameters were used in the study, but it is known that real parameters differ greatly from macroscopic ones. To increase the accuracy of modeling the sensor element in further studies, it will be necessary to take into account dimensional changes in the optical parameters of the nanosized metal component in the structure of the sensor element.

Keywords — SPR; biosensor; dielectric; thin film; gold.

