

МОДЕЛЮВАННЯ ПРОЦЕСІВ ТА ЯВИЩ В ЕЛЕКТРОНІЦІ

УДК 535

МОДЕЛЮВАННЯ РОСТУ ФРАКТАЛЬНИХ КЛАСТЕРІВ ТА РОЗРАХУНОК ЇХНІХ ОПТИЧНИХ СПЕКТРІВ

І. Болеста, Р. Грицьків, І. Колич

*Львівський національний університет імені Івана Франка
вул. Ген. Тарнавського, 107, 79017 Львів, Україна
bolesta@electronics.wups.lviv.ua*

З використанням комп'ютерного моделювання визначено взаємозв'язок між структурою фрактальних кластерів та їхніми оптичними спектрами. Симуляцію росту фрактальних кластерів реалізовано у моделях частинка–кластер для дво- і тривимірних випадків та кластер–кластер для двовимірних випадку. Спектри фрактальних кластерів розраховували методом дискретної дипольної апроксимації, у якій враховано електродинамічну взаємодію між частинками в інтервалі ближнього, проміжного і дальнього поля. Доведено, що об'єднання невзаємодійних частинок у фрактал супроводжується появою більш довгохвильової смуги поверхневого плазмонного резонансу. Її інтенсивність зростає зі збільшенням кількості агрегатизованих частинок, а максимум зміщується у довгохвильову ділянку. З'ясовано, що характер спектра фрактальних кластерів однаковий для різних моделей росту фракталів. Отримані результати якісно узгоджуються з експериментальними дослідженнями оптичних спектрів нанодиспергованих систем.

Ключові слова: фрактальні кластери, екстинкція, поверхневий плазмонний резонанс, дискретна дипольна апроксимація.

Розвиток методів розрахунку оптичних характеристик гетерогенних систем є одним з головних завдань фізики наноструктурованих матеріалів. Розробка комп'ютерних програм для розрахунку спектрів екстинкції (поглинання + розсіяння) середовищ, які містять агрегати наночастинок (нанокомпозити, колоїдні системи, металеві плівки з острівцевою структурою та ін.), дає змогу використовувати обчислювальні методи для швидкого аналізу та прогнозування властивостей наносистем. Зокрема, із вигляду їхніх спектрів екстинкції можна оцінити взаємодію між частинками, ступінь їхньої агрегатизації, інші характеристики, які описують наносистеми. [1–6].

Історично першою працею, присвяченою розрахунку оптичних спектрів металевих кластерів, треба вважати теорію Мі [18, 19], у якій отримано точний розв'язок для дифракції плоскої електромагнітної хвилі на однорідній ізотропній металевій сфері довільного розміру та складу, що перебуває в однорідному діелектричному середовищі. Теорію Мі можна застосовувати також для опису ансамблю сферичних частинок за

умови їхньої ідентичності, хаотичного розподілу і якщо відстань між частинками є значною. За цих умов не враховують взаємодії між частинками.

З іншого боку відомо, що в металевих кластерах зовнішнє поле наводить велетенський (за атомними мірками) дипольний момент [22]. У випадку, коли відстань між диполями є меншою від довжини світлової хвилі, спостерігають сильну диполь-дипольну взаємодію [23]. Особливість диполь-дипольної взаємодії полягає в тому, що самоузгоджене поле в точці локалізації певної частинки дорівнює нулю за умови сферично симетричного розподілу навколишніх частинок. Унаслідок того, що фрактальним кластерам властива локальна анізотропія оточення кожної частинки, то компенсація домішок до локального поля (з урахуванням переважного внеску найближчого оточення) не відбуватиметься. Це призводитиме до появи сильних локальних електромагнітних полів, які будуть неоднакові у різних точках фрактального кластера (флуктуація поля) [6]. Локальні поля, відповідно, спричиняють зростання оптичних сприйнятливостей частинок, які виявляються в лінійно та нелінійно оптичних характеристиках фрактальних кластерів [3, 4].

Наша мета – визначення взаємозв'язку між структурою, яку формують металеві кластери в середовищах, та їхніми оптичними спектрами. Для вирішення цього завдання створено комп'ютерні програми моделювання росту фрактальних кластерів і визначення їхньої фрактальної розмірності та розраховано їхні спектри екстинкції з урахуванням диполь-дипольної взаємодії на різних стадіях агрегатизації.

Моделювання росту фрактальних кластерів. Переважна більшість фрактальних структур у природі утворюється шляхом агрегатизації елементів. Зокрема, утворюються фрактальні структури в колоїдах, аерозолях, частинках сажі та порошу [7, 8]. Агрегати, які формуються в нанокompозитах, також мають структуру, близьку до фрактальної. Для розуміння механізму росту фракталів широко використовують моделювання. Утворення фрактальних агрегатів з окремих частинок можна змоделювати за допомогою спеціальних алгоритмів у дво- та тривимірному випадках.

Є декілька відомих моделей росту фрактальних агрегатів, найпоширеніші з яких – моделі частинка–кластер та кластер–кластер. У цих моделях формування кластерів відбувається внаслідок злиття менших утворень (атомів, субкластерів). Основна відмінність між цими двома моделями полягає в наявності центра росту (затравки) у моделі частинка–кластер, тоді як у моделі кластер–кластер усі структурні елементи рівноправні [7–10].

Найпоширенішою є модель агрегатизації з обмеженою дифузією (АОД), або модель частинка–кластер [7–10]. Алгоритм цієї моделі такий. На двовимірній нескінченій ґратці виділяють одну комірку, яка слугує зародком для подальшого розвитку кластера. На наступному кроці у ґратку вводять ще одну частинку, розміщену на значній відстані від початкової і яка хаотично рухається по ґратці, переходячи з однаковою ймовірністю в одну з сусідніх комірок. Якщо частинка на певному кроці руху опиняється безпосередньо біля вибраної комірки, то вона закріплюється в цій позиції. Далі у ґратку запускають наступну частинку, початкове положення якої також випадкове, яка хаотично рухається доти, доки не опиниться поблизу попередніх двох частинок. Описаний процес проводять багаторазово. Якщо ж частинка віддалятиметься від центра–зародка, так що її відстань від центра перевищить задане критичне значення, то її вилучають з процесу.

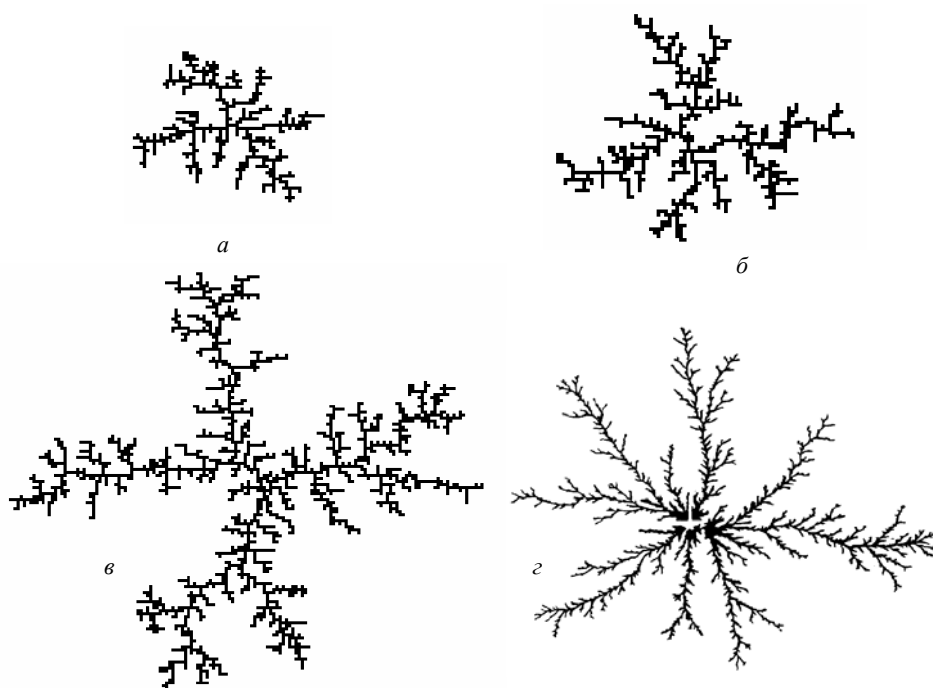


Рис. 1. Фрактальні кластери, змодельовані алгоритмом АОД з 500 (*a*), 700 (*б*) і 2000 частинок (*в*). Показано також фрактальний кластер, утворений у разі виділення цинку в процесі електролізу (*г*) [7]

На рис. 1, *a–в* показано кластери з різною кількістю частинок, змодельовані у моделі АОД. Їхня структура подібна на структуру реальних фрактальних кластерів (див. рис. 1, *г*) [7, 8]. Фрактальна розмірність кластера в моделі АОД, яку визначили методом підрахунку боксів [24], $D \approx 1,70$. Отримане значення добре узгоджується з фрактальними розмірностями реальних двовимірних утворень, які є в межах 1,73–1,75 [7, 8].

Ми розробили програму для моделювання фрактальних кластерів у моделі частинка–

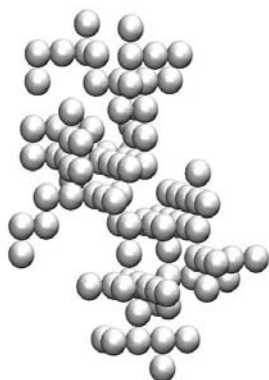


Рис. 2. Тривимірний фрактальний агрегат зі 100 частинок, отриманий у моделі АОД

кластер для тривимірного випадку [5]. На рис. 2 зображено тривимірний кластер зі ста частинок.

Фрактальну розмірність тривимірних кластерів визначили зі співвідношення

$$D = \log \frac{N_i}{R_g / r}, \quad (1)$$

де N_i – кількість частинок у фракталі; r – радіус частинки; $R_g = \sqrt{\langle |r_c - r_i|^2 \rangle}$ – радіус обертання кластера (r_c – координати центра мас).

З'ясовано, що починаючи з $N \approx 500$ частинок, значення фрактальної розмірності кластерів $D \approx 2,50$ незалежно від кількості частинок у ньому, що добре узгоджується з експериментальними даними [5].

Розроблена програма дає змогу також оцінити ступінь макроскопічної анізотропії фрактала $\Delta L / L$, де $L = \frac{1}{3}(L_x + L_y + L_z)$ (L_x, L_y, L_z – розміри фрактала вздовж осей

координат): $\Delta L = \frac{1}{3}(|L_x - L| + |L_y - L| + |L_z - L|)$. Згідно з критерієм [5], фрактали

вважають ізотропними, якщо $\Delta L / L \leq 0,15$. Моделювання 100 фрактальних кластерів з кількістю частинок $N = 500$ засвідчили, що понад 31 % агрегатів не задовольняє цього критерію, тобто їх треба зачислити до анізотропних. Це суперечить експериментальним даним [5]. Основна причина невідповідності полягає в тому, що в моделях росту фіксують характер процесу агрегатизації, характер руху частинок (прямолінійний чи броунівський) і ймовірність коагуляції під час взаємодії, тоді як у процесі росту ці характеристики постійно змінюються.

Моделювання росту фракталів у алгоритмі кластер–кластер відбувається на скінченній квадратній ґратці з періодичними граничними умовами [7, 8]. На початковому етапі задають число c , яке характеризує зайняту частину комірок ґратки. Після цього у вузлах ґратки випадково розміщують частинки, які хаотично рухаються. Вважають, що частинки, які є безпосередніми сусідами, утворюють кластер. На наступних кроках частинки і новоутворені кластери також випадково переміщуються з ймовірністю, пропорційною до їхньої рухливості на відстань кроку ґратки у одному з чотирьох рівноймовірних напрямів. Якщо один кластер контактує з іншим, то вони зливаються в один. Отже, зі збільшенням часу моделювання кількість кластерів зменшується, а їхні розміри зростають. Процес продовжується доти, доки залишиться тільки один кластер.

На рис. 3 показано утворення фрактальних кластерів у моделі кластер–кластер для системи з 82 частинок. У початковий момент часу (див. рис. 3, 1) існують тільки ті частинки, які не взаємодіють. Процес агрегатизації зображено на рис. 3, 2–7, а єдиний кластер, який сформувався у процесі агрегатизації, – на рис. 3, 8. Числові дані, які характеризують динаміку процесу, відображені на рис. 4. На початковій стадії (див. рис. 4, 1), усі частинки є ізольованими, а зі збільшенням часу (2–7) виникають кластери з різною кількістю елементів. На кінцевому етапі (8) сформувався один кластер, який містить 82 частинки. У природі існують фрактальні утворення, структура яких близька до кластерів, отриманих з моделі кластер–кластер.

Фрактальна розмірність кластерів, сформованих за механізмом частинка–кластер, є дещо меншою, ніж у випадку моделі АОД і становить 1,44 [7].

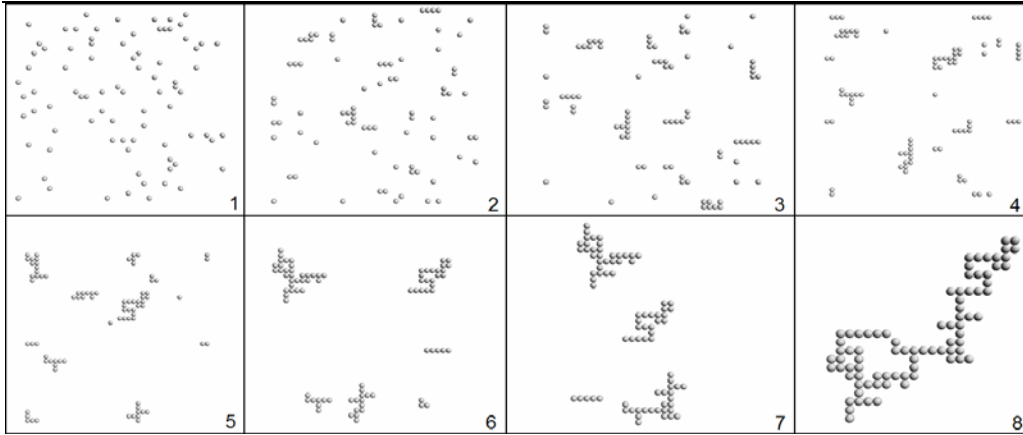


Рис. 3. Динаміка формування фрактального кластера з 82 частинок у моделі кластер–кластер

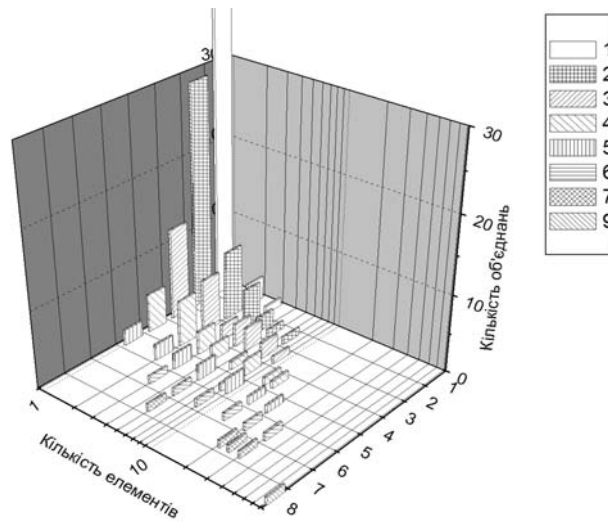


Рис. 4. Характеристика структур на різних стадіях агрегатизації. Цифри 1–8 відповідають позначенням на рис. 3

Розрахунок спектрів. Спектри екстинкції фрактальних кластерів розраховували методом дискретної дипольної апроксимації (ДДА) [11–13]. Метод полягає в тому, що будь-який об’єкт, на який падає поляризована електромагнітна хвиля, зазнає апроксимування диполями. Оскільки куля радіусом a в електричному полі має властивості диполя [14], то досліджуване тіло зазнає апроксимування сферами.

У разі виконання умови [15]

$$a = \lambda \tag{2}$$

де λ – довжина падаючої хвилі у вакуумі, поле, в якому містяться диполі, вважають однорідним. Унаслідок хаотичного розміщення диполів у фракталі відстань між ними ϵ

різною, тому їхню взаємодію необхідно розглядати у ділянці ближнього, середнього та дальнього полів.

Уважають, що для кожного j -го диполя ($j = 1, \dots, N$) відомі його координати \mathbf{r}_j та тензор поляризованості $\hat{\alpha}_j$, який у загальному випадку може бути комплексним. Тоді дипольний момент \mathbf{p}_j j -го диполя

$$\mathbf{p}_j = \hat{\alpha}_j \mathbf{E}_{j, \text{лок}}, \quad (3)$$

де $\mathbf{E}_{j, \text{лок}}$ – локальне поле у точці локалізації відповідного диполя.

У випадку ізотропного матеріалу діагональні компоненти тензора є однаковими α_j , тоді рівняння (3) набуває вигляду

$$\mathbf{p}_j = \alpha_j \mathbf{E}_{j, \text{лок}}. \quad (4)$$

Поляризованість диполя залежить від комплексної діелектричної проникності матеріалу ϵ і у випадку статичного однорідного поля задане співвідношенням Клаузіуса–Мосотті [17, 18]

$$\alpha_j^0 = \frac{3}{4\pi} \frac{\epsilon - 1}{\epsilon + 2}, \quad (5)$$

де n – концентрація диполів.

В електричному полі світлової хвилі диполі коливаються з частотою світла, що є причиною виникнення додаткового електричного поля радіації (або поля “випромінювальної реакції”) [12]:

$$\mathbf{E}_{j, \text{рад}} = i \frac{2}{3} k^3 \mathbf{p}_j, \quad (6)$$

де $k = \frac{2\pi}{\lambda}$ – хвильове число. Тоді з урахуванням поля радіації дипольний момент у першому наближенні

$$\mathbf{p}_j = \alpha_j^0 (\mathbf{E}_{j, \text{лок}} + \mathbf{E}_{j, \text{рад}}). \quad (7)$$

З урахуванням (6) та (7) поляризованість j -го диполя

$$\alpha_j = \frac{\alpha_j^0}{1 - i(2/3)k^3 \alpha_j^0}. \quad (8)$$

Ефективний переріз екстинкції визначений уявною частиною дипольного моменту \mathbf{p}_j [12]:

$$C_{\text{ext}} = \frac{4\pi k}{|\mathbf{E}_{\text{пад}}|^2} \sum_{j=1}^N \text{Im}(\mathbf{E}_{\text{пад}, j}^* \cdot \mathbf{p}_j), \quad (9)$$

тому для розрахунку спектра необхідно обчислити дипольні моменти \mathbf{p}_j частинок фрактального кластера. Для цього потрібно розв’язати рівняння (4), у якому локальне поле $\mathbf{E}_{j, \text{лок}}$ складається з падаючого поля $\mathbf{E}_{j, \text{пад}}$ та поля, створеного рештою $N - 1$ диполів $\mathbf{E}_{j, \text{дип}}$ у місці j -го, тобто

$$\mathbf{E}_{j, \text{лок}} = \mathbf{E}_{j, \text{пад}} + \mathbf{E}_{j, \text{дип}}. \quad (10)$$

Під падаючим полем в j -й комірці розуміють плоску хвилю, описувану співвідношенням

$$\mathbf{E}_{j, \text{пад}} = \mathbf{E}_0 \exp(i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}_j - i\omega t). \quad (11)$$

Електричне поле, створене k -м диполем у місці j -го, описують лінійним стосовно дипольного моменту \mathbf{p}_k рівнянням [14]

$$\mathbf{E}_{jk, \text{ дип}} = -\mathbf{A}_{jk} \mathbf{p}_k = \frac{e^{ikr_{jk}}}{r_{jk}^3} \left[k^2 (\mathbf{r}_{jk} \times \mathbf{p}_k) \times \mathbf{r}_{jk} + (3\mathbf{r}_{jk} (\mathbf{r}_{jk} \cdot \mathbf{p}_k) - r_{jk}^2 \mathbf{p}_k) \frac{1 - ikr_{jk}}{r_{jk}^2} \right], \quad (j \neq k), \quad (12)$$

де $\mathbf{r}_{jk} = \mathbf{r}_j - \mathbf{r}_k$, \mathbf{A}_{jk} – матриця розміру 3×3 . Тоді дипольний момент j -го диполя (4) з урахуванням співвідношень (10) та (12) запишемо так

$$\mathbf{p}_j = \alpha_j \left(\mathbf{E}_{j, \text{лок}} - \sum_{k \neq j} \mathbf{A}_{jk} \mathbf{p}_k \right). \quad (13)$$

Перепишемо систему лінійних рівнянь (13) у вигляді:

$$\sum_k \mathbf{A}_{jk} \mathbf{p}_k = \mathbf{E}_{j, \text{пад}} \quad (j = 1, 2, \dots, N), \quad (14)$$

де при $j=k$ записана матриця розміру 3×3 , діагональні елементи якої є обернено пропорційними до поляризованості:

$$\mathbf{A}_{jj} = \begin{pmatrix} \alpha^{-1} & 0 & 0 \\ 0 & \alpha^{-1} & 0 \\ 0 & 0 & \alpha^{-1} \end{pmatrix}. \quad (15)$$

Остаточно зі співвідношення (14) отримуємо таке матричне рівняння для визначення шуканих дипольних моментів:

$$\mathbf{A} \mathbf{p} = \mathbf{E}_{\text{пад}}, \quad (16)$$

де \mathbf{A} – симетрична матриця з комплексними елементами розміру $3N \times 3N$, а вектори-стовпці дипольного моменту та напруженості поля падаючого світла $\mathbf{p} = (p_{1x}, p_{1y}, p_{1z}, \dots, p_{Nx}, p_{Ny}, p_{Nz})^T$ та $\mathbf{E}_{\text{пад}} = (E_{\text{пад}1x}, E_{\text{пад}1y}, E_{\text{пад}1z}, \dots, E_{\text{пад}Nx}, E_{\text{пад}Ny}, E_{\text{пад}Nz})^T$.

Для розрахунку спектра матрицю \mathbf{A} з рівняння (16) будують у зручнішому вигляді. Зокрема, діагональні елементи матриці \mathbf{A} формують з використанням матриці (15), а недіагональні елементи отримують зі співвідношення (12), у якому матриця \mathbf{A}_{jk} за допомогою нескладних перетворень зводиться до вигляду

$$\mathbf{A}_{jk} = \frac{e^{ikr_{jk}}}{r_{jk}} \left[k^2 (\hat{\mathbf{r}}_{jk} \hat{\mathbf{r}}_{jk} - \mathbf{I}) + (3\hat{\mathbf{r}}_{jk} \hat{\mathbf{r}}_{jk} - \mathbf{I}) \frac{ikr_{jk} - 1}{r_{jk}^2} \right], \quad (17)$$

де $\hat{\mathbf{r}}_{jk} \equiv \frac{\mathbf{r}_j - \mathbf{r}_k}{r_{jk}}$, \mathbf{I} – одинична матриця розміру 3×3 .

Умови розрахунку. Рівняння (16) розв'язували методом спряжених градієнтів (МСГ) з різними модифікаціями [20, 21]. У першому випадку всіх дійсних елементів матриць та векторів у класичному алгоритмі МСГ [21] замінювали на комплексні, а у другому – рівняння (16) зводилося до вигляду:

$$\begin{bmatrix} \text{Re } \mathbf{A} & -\text{Im } \mathbf{A} \\ \text{Im } \mathbf{A} & \text{Re } \mathbf{A} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \text{Re } \mathbf{p} \\ \text{Im } \mathbf{p} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \text{Re } \mathbf{E} \\ \text{Im } \mathbf{E} \end{bmatrix}. \quad (18)$$

У разі такого перетворення матриця рівняння (18) стає несиметричною, а для знаходження дипольних моментів використовують несиметричний МСГ [20].

Для тестування програми ми обчислили спектри екстинкції сферичного кластера золота і порівняли їх зі спектрами, що розраховані іншими методами. Простежено добру

збіжність спектрів, розрахованих за допомогою розробленої програми зі спектрами, розрахованими за теоріями Мі та Релея [18, 19].

Результати моделювання. Під час розрахунку спектрів екстинкції фрактальних кластерів необхідно враховувати конкретну фізичну природу його елементів. Тому кожен елемент фрактального кластера, який вважали точкою в разі моделювання процесу його росту, зображали кластером срібла сферичної форми з діаметром 10 нм у вакуумі. Це пов'язано з тим, що кластери срібла мають ізольовану, порівняно вузьку смугу плазмонного поглинання, а тому є хорошими модельними об'єктами для теоретичних та експериментальних досліджень спектрів.

У випадку розрахунків приймали, що площина поляризації лінійно поляризованого світла була орієнтована під кутом 45° , а напрям його поширення (тобто напрям хвильового вектора) перпендикулярний до площини, у якій існує фрактал.

Результати моделювання. На рис. 5 показані спектри екстинкції фрактальних агрегатів на різних стадіях агрегації в моделі частинка–кластер.

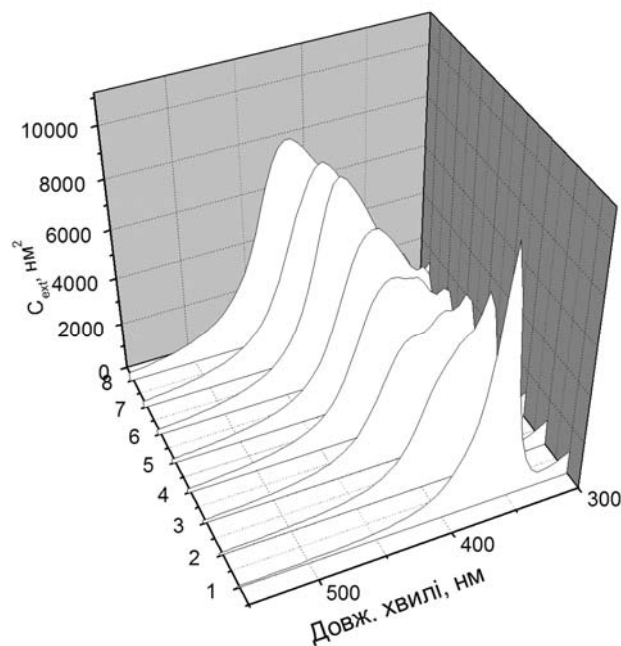


Рис. 5. Спектри екстинкції фрактальних кластерів на різних стадіях агрегації (позначення кривих відповідає позначенням на рис. 4)

У спектрі екстинкції вихідної системи (стан 1) спостерігають один максимум при 355 нм, який відповідає невзаємодійним диполям. Його природа пов'язана з поверхневим плазмонним резонансом (ППР), який виникає в металевих кластерах срібла у полі світлової хвилі. Отримане під час розрахунків спектральне положення максимуму смуги ППР у вакуумі та її півширина добре узгоджуються з розрахунками спектрів срібних кластерів іншими методами та з літературними даними [23].

У процесі агрегуванні виникають нові смуги екстинкції в довгохвильовій ділянці спектра. Наприклад, у спектрі, що відповідає стану 2, з'являється одна смуга 372 нм, а у спектрі стану 3 – дві смуги при 372 та 394 нм. У разі подальшого зростання агрегації значення екстинкції в максимумі смуги при 355 нм суттєво зменшується. Відповідно, значення екстинкції в довгохвильовій ділянці спектра зростає, а максимум спектра монотонно зміщується у довгохвильову ділянку. У випадку одного кластера (стан 8) спектр є асиметричною смугою з максимумом у ділянці 418 нм, півширина якої є суттєво більшою від півширини спектра частинок, що не взаємодіють.

Отримані результати якісно узгоджуються з даними експериментальних досліджень спектрів колоїдів благородних металів: значний низькочастотний зсув максимуму смуг плазмонного поглинання та збільшення їхньої півширини в процесі їхньої агрегації автори пов'язують з сильною електродинамічною взаємодією між сусідніми частинками фрактального кластера.

Оскільки в моделі частинка–кластер на різних етапах росту фрактального кластера існує одна частинка та фрактал, то для з'ясування динаміки зміни розраховували спектри екстинкції фрактальних кластерів з різною кількістю частинок. З'ясовано, що в разі невеликої кількості частинок ($N \sim 10-15$) вигляд спектра суттєво залежить від кількості частинок, відстані між ними, взаємного положення. Детальніше ці питання розглянемо окремо. Також розраховано спектри фракталів з різною кількістю частинок, які зображені на рис. 6.

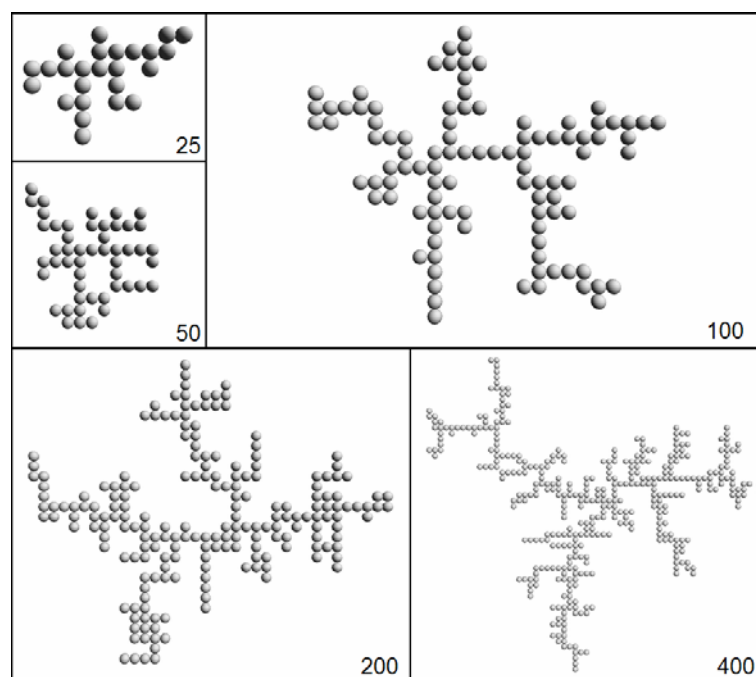


Рис. 6. Фрактали, утворені за механізмом кластер–частинка, з різною кількістю елементів, для яких розраховували спектри екстинкції

Відповідні спектри екстинкції показані на рис. 7. Як бачимо, незалежно від кількості частинок у фракталі, усі спектри мають якісно однаковий характер: спостерігають смугу екстинкції з максимумом при 355 нм, яка відповідає поверхневому плазмонному резонансу частинок срібла, що не взаємодіють, та більш довгохвильові смуги, пов'язані з ефектами їхньої агрегатизації. Збільшення кількості частинок у кластері супроводжується тільки зростанням ефективного перерізу екстинкції. Таку залежність спектрів пояснюють тим, що в моделі частинка–кластер всі елементи фрактала незалежно від їхньої кількості є взаємодійними, тому збільшення кількості частинок у фракталі повинно приводити тільки до зростання коефіцієнта екстинкції.

На рис. 8 показано порівняння спектрів екстинкції фракталів з однаковою кількістю частинок, утворених методом кластер–кластер, та частинка–кластер. Простежено незначну відмінність між спектрами у ділянці плазмонного поглинання ізолюваних частинок.

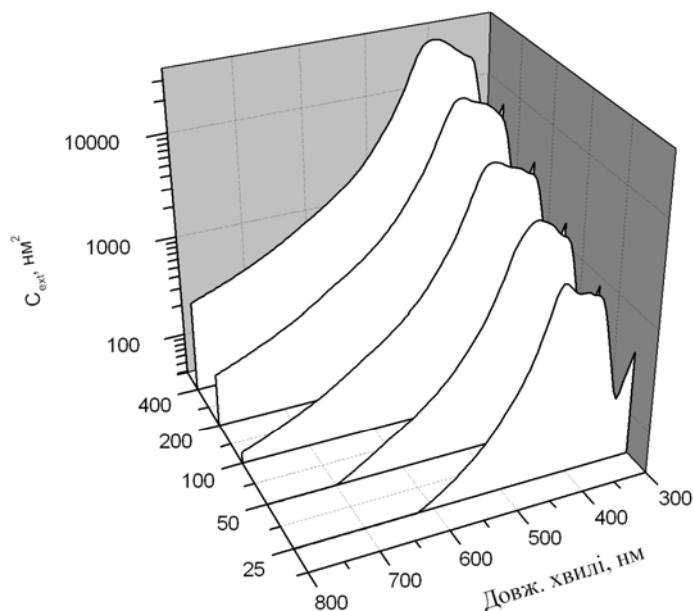


Рис. 7. Спектри екстинкції фракталів, утворених за механізмом кластер–частинка з різною кількістю елементів

З наведених результатів випливає, що агрегатизація частинок, які не взаємодіють, супроводжується виникненням більш довгохвильової смуги поверхневого плазмонного резонансу (порівняно з аналогічною смугою частинок, які не взаємодіють). Зі збільшенням ступеня агрегатизації інтенсивність цієї смуги зростає, а її максимум зміщується у довгохвильову ділянку. Характер спектра фрактальних кластерів не залежить від механізму їхнього формування.

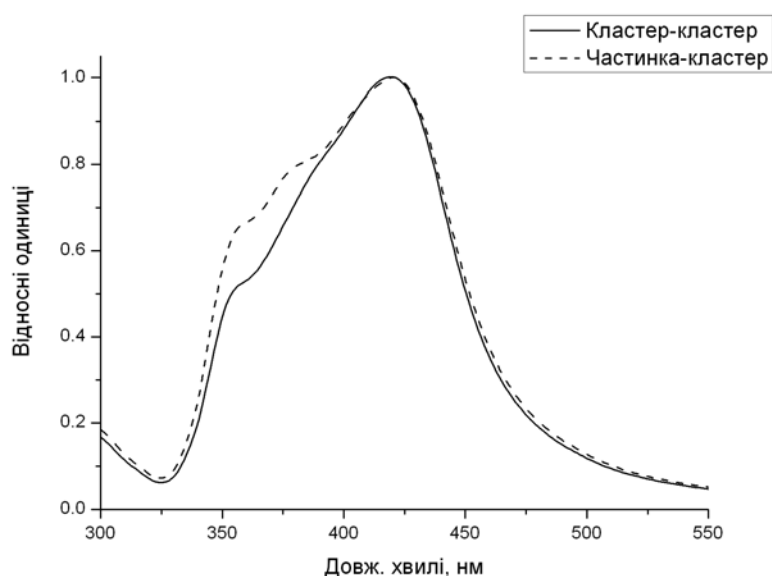


Рис. 8. Пронормовані спектри екстинкції фракталів, утворених різними методами

Отже, на підставі алгоритмів частинка–кластер та кластер–кластер змодельовано ріст фрактальних кластерів та визначено їхню фрактальну розмірність.

Методом дискретної дипольної апроксимації, у якому враховано електродинамічну взаємодію між частинками, розраховано спектральні залежності коефіцієнтів екстинкції на різних стадіях агрегатизації кластерів. З'ясовано, що зі зростанням ступеня агрегатизації виникає довгохвильова смуга поверхневого плазмонного резонансу, яку пов'язують з електродинамічною взаємодією між елементами фрактала.

Отримані результати якісно узгоджуються з даними експериментальних досліджень оптичних спектрів кластерів благородних металів.

1. *Markel V.A., Shalaev V.M.* Computational Approaches in Optics of Fractal Clusters. /Chapter in book “Computational Studies of New Materials”/ Ed. by D.A.Jelski, T.F.George. World Scientific, Singapore, 1999.
2. *Shalaev V.M.* Electromagnetic Properties of small – particle compositions. Phys. Reports. 1996. Vol. 272. P. 61–137.
3. *Markel V.A., Shalaev V.M.* Small – particle compositions. I. Linear Optical Properties. Phys. Rev. 1996. Vol. B53. N 5. P. 2425–2434.
4. *Markel V.A., Shalaev V.M.* Small – particle compositions. II. Nonlinear Optical Properties. Phys. Rev. 1996. Vol. B53. N 5. P. 2437–2449.
5. *Karpov S.V., Gerasimov V.S., Isaev I.L.* et al. Simulation of the growth of nanoparticle aggregates reproducing their natural structure in disperse systems. Colloid J. 2006. Vol. 68. N. 4. P. 441–450.

6. *Karpov S.V., Gerasimov V.S., Isaev I.L.* et al. Local anisotropy and giant enhancement of local electromagnetic fields in fractal aggregates of metal nanoparticles. *Phys. Rev.* 2005. Vol. B72 . P. 2545 (1–8).
7. *Жульен Р.* Фрактальные агрегаты // *Успехи физ. наук.* 1989. Т. 157. № 2. С.339–357.
8. *Смирнов Б.М.* Фрактальные кластеры // *Успехи физ. наук.* 1986. Т. 149. № 2. С. 177–219.
9. *Witten T.A. Sander. L.M.* Diffusion-limited aggregation, a kinetic critical phenomenon // *Phys. Rev. Lett.* 1981. Vol. 47. N 19. P. 1400–1403.
10. *Meakin P.* Formation of fractal clusters and networks by irreversible diffusion-limited aggregation // *Phys. Rev. Lett.* 1983. Vol. 51. N 13. P. 1119–1122.
11. *Purcell E. M., Pennypacker C. R.* Scattering and Absorption of Light by Nonspherical Dielectric Grains // *Astrophys. J.* 1973. Vol. 186. P. 705–714.
12. *Draine B. T.* The discrete-dipole approximation and its application to interstellar graphite grains // *Astrophys. J.* 1988. Vol. 333. P. 848–872.
13. *Draine B. T., Flatau P. J.* Discrete dipole approximation for scattering calculations // *J. Opt. Soc. Am. A.* 1994. Vol. 11. P. 1491–1499.
14. *Jackson J. D.* Classical electrodynamics. New York: Wiley, 1962. 641 p.
15. *Ландау Л. Д., Лифшиц Е. М.* Электродинамика сплошных сред. М.: Наука, 1982. 623 с.
16. *Draine B. T., Flatau P. J.* User Guide for the Discrete Dipole Approximation Code DDSCAT 7.0 // <http://arXiv.org/abs/astro-ph/0809.0337>. 2008.
17. *Куммель Ч.* Введение в физику твердого тела. М.: Наука, 1978. 790 с.
18. *Борен К. Хафмен Д.* Поглощение и рассеяние света малыми частицами. М.: Мир, 1986. 664 с.
19. *Венгер С. Ф., Гончаренко А. В., Дмитрук М. Л.* Оптика малих частинок і дисперсних середовищ. К.: Наук. думка, 1999. 348 с.
20. *Hestenes M. R., Stiefel E.* Methods of Conjugate Gradients fo Solving Linear Systems // *J. Res. Nat. Bur. Stand.* 1952. Vol. 49. N. 6.
21. *Stoer J., Bulirsch R.* Introduction to Numerical Analysis. New York: Springer-Verlag. 1993. 672 p.
22. *Болеста І. М.* Металічні кластери. // *Фіз. зб. НТШ.* 2008. Т. 7. С. 9–25
23. *Карпов С. В., Слабко В. В.* Оптические и фотофизические свойства фрактально-структурированных золей металлов. Новосибирск: Издательство СО РАН, 2003. 265 с.
24. *Foroutan-pour K., Dutilleul P., Smith D. L.* Advances in the implementation of the box-counting method of fractal dimension estimation // *Appl. Math. Comp.* 1999 Vol. 105. N 2–3. P. 195–210.

**THE MODELLING OF FRACTAL CLUSTERS GROWTH
AND CALCULATION OF THEIR OPTICAL SPECTRA****I. Bolesta, R. Hrytskiv, I. Kolych**

*Ivan Franko National University of Lviv
Tarnavsky Str., 107, UA-79017 Lviv, Ukraine
bolesta@electronics.wups.lviv.ua*

The relationship between the structure of fractal clusters and their optical spectra has been established. 2D simulation of the cluster growth has been performed within the framework of particle-cluster and cluster-cluster models. The calculation of fractal cluster spectra has been carried out by means of discrete dipole approximation method. It was demonstrated, that considering the interaction between fractal cluster elements allows to observe long-wavelength bands of the surface plasmonic resonance. The peaks positions of these bands are red shifted with respect to the resonant peaks of the non-interacting particles. Essential results of the present research are in good agreement with the experimental optical studies of nanodisperse systems.

Key words: fractal clusters, extinction spectra, surface plasmon resonance, discrete dipole approximation.

**МОДЕЛИРОВАНИЕ РОСТА ФРАКТАЛЬНЫХ КЛАСТЕРОВ
И РАСЧЕТ ИХ ОПТИЧЕСКИХ СПЕКТРОВ****И. Болеста, Р. Грыцкив, И. Колыч**

*Львовский национальный университет имени Ивана Франко
ул. Ген. Тарнавского, 107, 79017 Львов, Украина
bolesta@electronics.wups.lviv.ua*

Исследовано взаимосвязь между структурой фрактальных кластеров и их оптическими свойствами. Моделирование процесса роста фрактальных кластеров осуществлено в моделях частица-кластер и кластер-кластер в двумерном случае. Расчет спектров фрактальных кластеров выполнено методом дискретной дипольной аппроксимации. Показано, что учет взаимодействия между частицами фрактального кластера приводит к расщеплению полосы поверхностного плазменного резонанса, увеличению их полуширины и смещению максимума в длинноволновую область спектра. Полученные результаты качественно согласуются с экспериментальными спектрами нанодиспергированных систем.

Ключевые слова: фрактальные кластеры, спектры экстинкции, поверхностный плазменный резонанс, дискретная дипольная аппроксимация.

Стаття надійшла до редколегії 12.07.2009

Стаття прийнята до друку 30.06.2009