

ОПТИЧЕСКИЕ СВОЙСТВА МЕТАЛЛИЧЕСКИХ СЛОЕВ В СИСТЕМАХ ДИЭЛЕКТРИК/МЕТАЛЛ/ДИЭЛЕКТРИК

© 2007 г. **К. Н. Афанасьев**, **Е. А. Бондарь**, доктор физ.-мат. наук; **М. В. Седова**, канд. техн. наук; **Л. П. Шадрина**, канд. техн. наук

Институт теоретической и прикладной электродинамики Объединенного института высоких температур РАН, Москва

На примере покрытий $\text{SiO}_2/\text{Cu}/\text{SiO}_2$ и $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Cu}/\text{Al}_2\text{O}_3$ в диапазоне длин волн $\lambda = 0,35\text{--}2,5$ мкм проведены исследования оптических свойств металлических слоев в трехслойных системах диэлектрик/металл/диэлектрик. Указанные покрытия получены методом послойного электронно-лучевого распыления на силикатном стекле. Впервые посредством вычислительного матричного метода расчета оптических постоянных (n и k) отдельного слоя в составе слоистой системы определены дисперсионные зависимости показателей преломления n и поглощения k промежуточного медного слоя в покрытиях $\text{SiO}_2/\text{Cu}/\text{SiO}_2$ и $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Cu}/\text{Al}_2\text{O}_3$. Показано, что свойства металлических слоев в рассматриваемых покрытиях в основном определяются микроструктурными эффектами.

Коды OCIS: 310.0310, 310.6860.

Поступила в редакцию 20.06.2006.

Введение

При конструировании различных энергетически эффективных и спектрально-селективных покрытий видимого и ИК диапазонов используются металлические полупрозрачные пленки в составе слоистых систем диэлектрик/металл/диэлектрик. Проблема прогнозирования свойств таких систем сводится к определению дисперсионных зависимостей действительной $\varepsilon_1 = n^2 - ik^2$ и мнимой $\varepsilon_2 = 2nk$ частей эффективной комплексной диэлектрической проницаемости $\varepsilon = \varepsilon_1 - i\varepsilon_2$ промежуточного металлического слоя, определяющей спектральный профиль кривых пропускания T и отражения R покрытий.

Многочисленные исследования [1–3] показали, что между расчетными и экспериментальными спектрами T и R металлодиэлектрических слоистых систем имеются существенные расхождения. По мнению некоторых авторов [1], они предположительно связаны с особенностями микроструктуры поверхности раздела слоев в этих системах. На основании результатов многих исследований [1, 3–5] установлено, что морфологическая структура и оптические характеристики тонких пленок металла и диэлектрика во многом определяются условиями и методами их нанесения. В то же время в работах [1, 6] отмечается, что расчетные параметры многослойных систем соответствуют экспериментальным только для идеально плоской границы раздела слоев, которую практически невозможно получить в реальной тонкопленочной системе.

Однако анализ литературных данных позволяет заключить, что влияние микроструктуры слоев металлодиэлектрических покрытий, полученных послойным электронно-лучевым напылением, на их

оптические параметры недостаточно изучено. Вместе с тем очевидно, что направленное изменение микроструктуры покрытий может служить одним из механизмов модифицирования их параметров.

Цель настоящей работы состояла в исследовании влияния микроструктуры подстилающих диэлектрических слоев в трехслойных покрытиях диоксид кремния/медь/диоксид кремния ($\text{SiO}_2/\text{Cu}/\text{SiO}_2$) и оксид алюминия/медь/оксид алюминия ($\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Cu}/\text{Al}_2\text{O}_3$) [6] на оптические характеристики медного слоя этих покрытий. Выбранные диэлектрики обладают хорошими оптическими и механическими свойствами [3], кроме того, в настоящее время интерес к исследованиям этих диэлектриков усилился в связи с перспективностью их использования в оптоэлектронных устройствах [

образцов контролировалась оптическим методом (описанным в работе [6]) по величине коэффициента пропускания T_m на длине волны $\lambda_m = 0,55$ мкм. При напылении слоев меди значение T_m бралось равным 60% [6]. Значение контролируемого коэффициента пропускания T_m в процессе напыления диэлектриков доводилось до 65–70% [6] для обеспечения необходимого эффекта просветления меди.

После напыления каждого слоя образцы выносились из напылительной камеры на воздух для проведения микроструктурных исследований.

Оптические исследования, включающие в себя измерение коэффициентов пропускания T и отражения R , проводились для изготовленных трехслойных систем при комнатной температуре на воздухе в диапазоне длин волн $\lambda = 0,35$ – $2,50$ мкм (T при нормальном угле φ падения света на покрытие и R при $\varphi = 10^\circ$) на спектрофотометре CARY 2415. Погрешность измерения T составляла $\pm 1\%$, а для R – $\pm 2\%$. Исследования морфологической структуры всех образцов, полученных в результате послойного напыления, выполнялись методом атомно-силовой микроскопии (АСМ) на микроскопе “Smena” [6].

Результаты экспериментов и обсуждение

Измеренные спектры пропускания T и отражения R покрытий $\text{SiO}_2/\text{Cu}/\text{SiO}_2$ (T_S , R_S) и $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Cu}/\text{Al}_2\text{O}_3$ (T_A , R_A) приведены на рис. 1а. Для проверки влияния материальных параметров диэлектриков (в частности, их показателей преломления n_D) на спектроскопические параметры покрытий нами были проведены модельные расчеты спектров T и R рассматриваемых покрытий. Расчет проводился для случая нормального падения электромагнитной волны на покрытия по соотношениям метода компьютерного конструирования многослойных энергетически эффективных покрытий [11]. Модельные спектры пропускания T и отражения R покрытий $\text{SiO}_2/\text{Cu}/\text{SiO}_2$ (T'_S , R'_S) и $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Cu}/\text{Al}_2\text{O}_3$ (T'_A , R'_A) рассчитаны в предположении, что оптические постоянные меди (n и k), оксида алюминия ($n_D = 1,65$) и диоксида кремния ($n_D = 1,45$) идентичны оптическим постоянным этих веществ в макроскопических образцах, и приведены на рис. 1б. Значения последних брались из литературных источников [12, 13]. При этом геометрическая толщина d диэлектрических слоев определялась на основании известного соотношения [14]

$$n_D d = \frac{\lambda_m}{4} - \frac{\lambda_m}{4\pi} \arctg \left(\frac{2kn_D}{n^2 + k^2 - n_D^2} \right).$$

Здесь $\lambda_m = 0,55$ мкм – длина волны, соответствующая максимальному коэффициенту пропускания

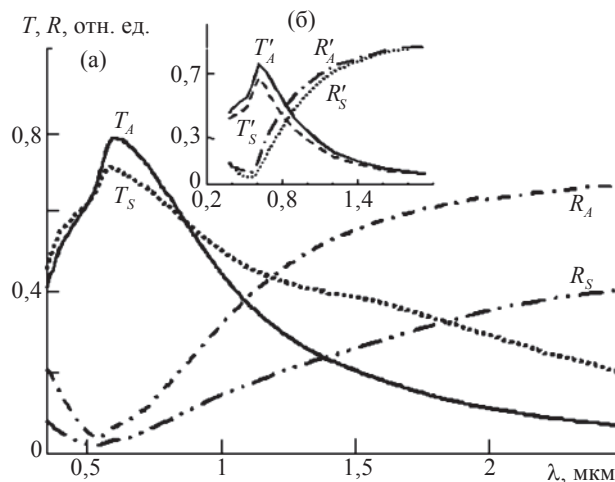


Рис. 1. Спектры пропускания и отражения трехслойных систем. а – экспериментальные: $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Cu}/\text{Al}_2\text{O}_3$ (T_A , R_A), $\text{SiO}_2/\text{Cu}/\text{SiO}_2$ (T_S , R_S); б – модельные: $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Cu}/\text{Al}_2\text{O}_3$ (T'_A , R'_A), $\text{SiO}_2/\text{Cu}/\text{SiO}_2$ (T'_S , R'_S).

покрытия T_m . Полученные значения d слоев диоксида кремния и оксида алюминия составили соответственно

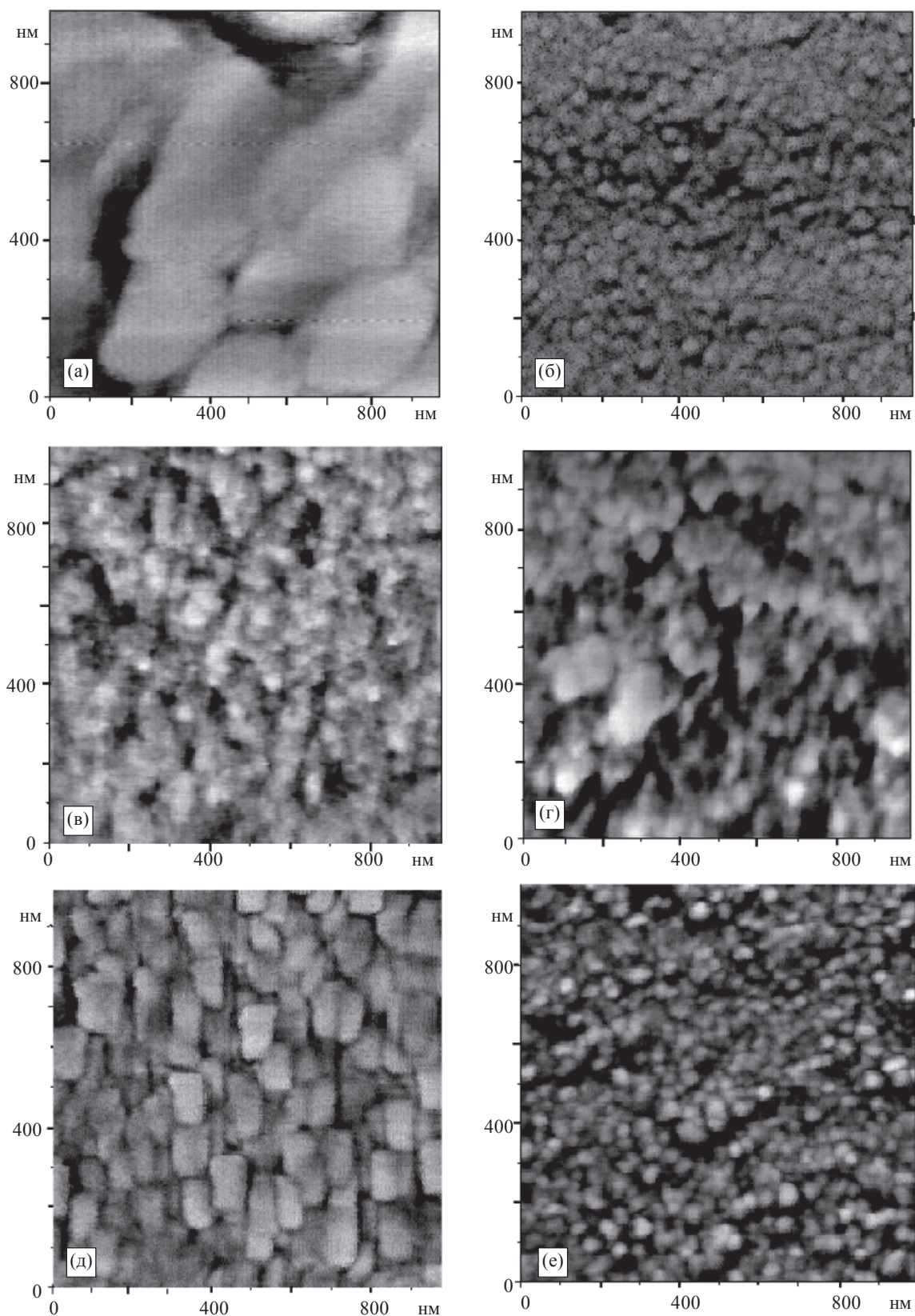


Рис. 2. АСМ-изображения поверхностной микроструктуры слоев трехслойных систем диэлектрик/металл/диэлектрик. а – SiO_2 , б – Al_2O_3 , в – SiO_2/Cu , г – $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Cu}$, д – $\text{SiO}_2/\text{Cu}/\text{SiO}_2$, е – $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Cu}/\text{Al}_2\text{O}_3$.

верхнего слоя SiO_2 покрытия $\text{SiO}_2/\text{Cu}/\text{SiO}_2$ (рис. 2д). Поверхностная микроструктура верхнего слоя Al_2O_3 покрытия $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Cu}/\text{Al}_2\text{O}_3$ (рис. 2е) аналогична структуре подстилающего слоя оксида алюминия (рис. 2б).

Понятно, что такие различия в микроструктуре слоев рассматриваемых покрытий не могли не оказать влияния на формирование микроструктурных и оптических свойств покрытий и медных слоев в их составе.

Оптические постоянные медного слоя

Для определения оптических постоянных медных слоев в рассматриваемых трехслойных покрытиях был использован вычислительный матричный метод [15], позволяющий по результатам спектрофотометрических измерений (коэффициента пропускания T , отражения со стороны покрытия R и подложки R') определить показатели преломления n , поглощения k и эффективной толщины $d_{\text{эф}}$ медного слоя в трехслойной системе диэлектрик/металл/диэлектрик. Метод основан на решении обратной задачи для матрицы преломления слоистой системы посредством итерационного метода непрерывного дифференциального спуска. Детали определения n , k и $d_{\text{эф}}$ металлсодержащей пленки в составе слоистой системы вычислительным матричным методом по результатам спектрофотометрических измерений подробно описаны в работах [6, 15].

Полученные “экспериментальные” дисперсионные зависимости n и k медного слоя покрытий $\text{SiO}_2/\text{Cu}/\text{SiO}_2$ (n_s, k_s) и $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Cu}/\text{Al}_2\text{O}_3$ (n_A, k_A) приведены на рис. 3а. Эффективные толщины $d_{\text{эф}}$ медного слоя в покрытиях $\text{SiO}_2/\text{Cu}/\text{SiO}_2$, $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Cu}/\text{Al}_2\text{O}_3$ составили соответственно 0,027, 0,039 мкм. Расхождение между значениями $d_{\text{эф}}$ хорошо коррелирует с изображениями морфологической структуры пленок меди на слоях диоксида кремния (рис. 2в) и оксида алюминия (рис. 2г). Более крупные чешуйчатые частицы меди, полученные на Al_2O_3 , соответствуют большему значению эффективной толщины промежуточного медного слоя покрытия $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Cu}/\text{Al}_2\text{O}_3$.

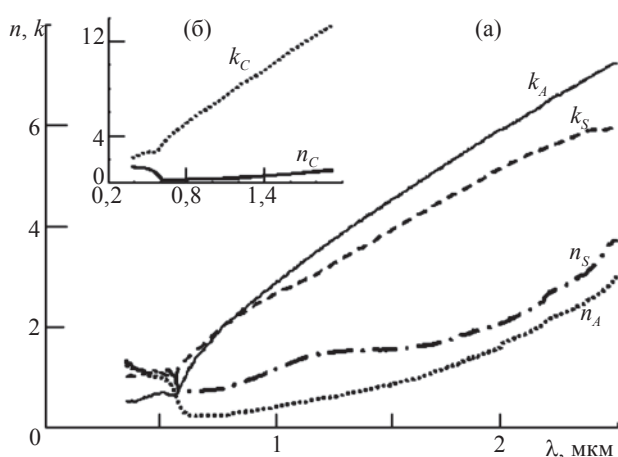


Рис. 3. Экспериментальные дисперсионные зависимости показателей преломления n и поглощения k медных слоев: а – в трехслойных системах. $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Cu}/\text{Al}_2\text{O}_3$ (n_A, k_A), $\text{SiO}_2/\text{Cu}/\text{SiO}_2$ (n_S, k_S); б – одиночной пленки меди на кварцевой подложке [12] (n_C, k_C).

Кроме того, сопоставляя изображения микроstructures медных слоев (рис. 2в и 2г) и их оптические постоянные (рис. 3а), можно убедиться, что для слоя меди на SiO_2 , имеющего рыхлую структуру, характерен более низкий эффективный коэффициент преломления $n_{\text{эф}} = \sqrt{n^2 - k^2}$, чем для слоя меди на Al_2O_3 , имеющего более плотную микроstructure. Подобная зависимость между структурой и оптическими постоянными тонкопленочных покрытий отмечалась в работе [1].

Анализ дисперсионных зависимостей n и k промежуточных медных слоев в рассматриваемых покрытиях (см. рис. 3а) позволяет заключить, что они характеризуют разные материалы и, как следствие этого, определяют значительный разброс между спектроскопическими характеристиками изготовленных (рис. 1а) и модельных (рис. 1б) покрытий. Несоответствие оптических постоянных промежуточных медных слоев, сформированных в трехслойных покрытиях $\text{SiO}_2/\text{Cu}/\text{SiO}_2$ и $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Cu}/\text{Al}_2\text{O}_3$, по нашему мнению, объясняется большим различием их микроstructures (рис. 2). Помимо этого, количественное расхождение между дисперсионными зависимостями n и k (рис. 3а) медных слоев в рассматриваемых покрытиях и одиночной пленки меди на кварцевой подложке n_C и k_C (рис. 3б) [12] свидетельствует о несплошной структуре медной пленки в этих покрытиях.

Заключение

3. *Martin P.J., Netterfield R.P.* Optical films produced by ion-based techniques. CSIRO, Division of Applied Physics Sydney, Australia 2070. Wolf E. Progress in optics XXIII. Elsevier science publishers B.V., 1986. 70 p.
4. *Lopez R., Ruiz R., Haglund R.F., Feldman L.C.* Pulsed laser deposition of conductive metall-dielectric optical filters // *Appl. Phys. A.* 2002. V. 74. P. 307–310.
5. *Barranco A., Yubero F., Cotrino J., Espios J.P., Benitez J., Rojas T.C., Allain J., Girardeau T., Riviere J.P., Gonzalez-Eliphe A.R.* Low temperature synthesis of dense SiO₂ thin films by ion beam induced chemical vapor deposition // *Thin Solid Films.* 2001. V. 396. P. 9–15.
6. *Бондарь Е.А., Седова М.В., Шадрина Л.П.* Исследование свойств промежуточных металлосодержащих слоев энергетически эффективных покрытий // Препринт №8-481 РАН, Объединенный институт высоких температур, 2005. 24 с.
7. *Suárez-García A., Gonzalo J., Afonso C.N.* Low-loss Al₂O₃ waveguides produced by pulsed laser deposition at room temperature // *Appl. Phys. A.* 2003. V. 77. P. 779–783.
8. *Minami Tadatsugu, Utsubo Tetsuharu, Yamatani Tsuyoshi, Miyata Toshihiro, Ohbayashi Yoshiaki.* SiO₂ electret thin films prepared by various deposition methods // *Thin Solid Films* 2003. V. 426. P. 47–52.
9. *Grandvist C.G.* Optical properties of granular materials: How to model coatings for energy-efficient windows. *Physical Phenomena in Granular Materials* // *Mat. Rrs. Symp. Proc.* 1990. V. 195. P. 201–212.
10. *De L.S., Weiming C.* A study on coating for energy efficiency // *Proc. SPIE. Materials and optics for solar energy conversion and advanced lighting technology.* 1987. V. 692. P. 121–123.
11. *Бондарь Е.А., Шадрина Л.П.* Разработка метода компьютерного конструирования многослойных энергетически эффективных покрытий для оконных стекол // Препринт № 8-445 РАН, Объединенный институт высоких температур, 2000. 21 с.
12. *Johnson P.B., Christy R.W.* Optical constants of noble metals // *Phys. Rev. B.* 1972. V. 6. № 12. P. 4370–4379.
13. *Золотарев В.М., Морозов В.Н., Смирнова Е.В.* Оптические постоянные природных и технических сред. Л.: Химия, 1984. 215 с.
14. *Szczyrbowski J., Dietrich A., Hartig K.* Bendable silver-based low emissivity coating on glass // *Solar Energy Materials* 1989. V. 19. P. 43–53.
15. *Бондарь Е.А., Шадрина Л.П.* Метод определения оптических постоянных поглощающей пленки в составе слоистой системы // *Опт. и спектр.* 2004. Т. 96. № 1. С. 128–132.