

# ОПТИЧЕСКОЕ МАТЕРИАЛОВЕДЕНИЕ И ТЕХНОЛОГИЯ

УДК 681.7.064.+539.216.535.34

## СНИЖЕНИЕ ПРЕДЕЛЬНЫХ ХАРАКТЕРИСТИК ПРОСВЕТЛЯЮЩИХ ПОКРЫТИЙ ЗА СЧЕТ ФЛУКТУАЦИЙ ТОЛЩИНЫ СЛОЕВ

© 2004 г. И. С. Гайнутдинов\*, доктор техн. наук; Е. А. Несмелов\*, доктор физ.-мат. наук; Р. С. Сабиров\*, канд. техн. наук; Г. И. Абзалова\*, А. В. Михайлов\*\*, канд. техн. наук

\* Государственный институт прикладной оптики, г. Казань

\*\* ГОИ им. С.И. Вавилова, Санкт-Петербург

Получены приближенные выражения для анализа влияния шероховатости межслойных поверхностей многослойного просветляющего покрытия и подложки на оптические свойства. Показано, что из-за шероховатости поверхностей коэффициент отражения просветляющего покрытия растет.

Коды OCIS: 310.6860, 310.1620.

Поступила в редакцию 08.10.2003.

Все теоретические разработки просветляющих интерференционных покрытий [1–3] базируются на допущении идеально ровных поверхностей подложки и пленок, полном отсутствии поглощения в подложке и пленках и однородности пленок. Реальные оптические поверхности всегда имеют некоторую шероховатость, что приводит к появлению на поверхности рассеянного излучения и, следовательно, к потерям, которые необходимо учитывать в полном балансе излучения. Поверхности пленок также имеют шероховатость, т. е. и на них имеются потери. Шероховатость поверхности пленок возникает как из-за случайного характера поступления паров испаряемого вещества к поверхности растущей пленки, так и из-за возможного появления в парах кластерных частиц различных размеров. Обе эти причины, а также различные технологические условия напыления [4–12] создают неровности на поверхности растущей пленки. При этом дефекты большого размера, имеющиеся на поверхности подложки, оказываются соизмеримыми с толщиной пленки и прорастают до поверхности покрытия, т. е. эти дефекты “наследуются” поверхностью покрытия и не участвуют в появлении рассеяния излучения на межслойных границах. Появление больших кластеров в потоке паров создает новые достаточно крупные дефекты, которые в свою очередь нарушают чистоту поверхности покрытия. Таким образом, поверхность покрытия оказывается немного хуже по чистоте, чем исходная поверхность подложки, что создает дополнительное рассеяние. Наличие в пленках пор приводит к появлению полос поглощения, характерных для воды, адсорбированной в порах, и является при-

чиной уменьшения среднего значения показателя преломления пленки и появления его флуктуаций. Таким образом, все вышеуказанные допущения оказываются справедливыми лишь с некоторым приближением. Однако то обстоятельство, что расчетные спектральные характеристики интерференционных покрытий в целом хорошо согласуются с экспериментальными данными, говорит о достаточности такой степени приближения, т. е. о правомерности принятых допущений. Рассмотрим ситуацию просветления несколько подробнее.

Простейшим просветляющим покрытием является четвертьволновый слой сульфида цинка, нанесенный на поверхность подложки из германия. В области спектра 8–12 мкм показатель преломления сульфида цинка  $n_{ZnS}$  близок к значению, требуемому для идеального просветления, т. е. почти равен корню квадратному из показателя преломления материала подложки (Ge), т. е.  $n_{ZnS} \approx \sqrt{n_{Ge}}$ . В этом случае [1] отражение на выбранной длине волны должно быть равно нулю. Однако на практике значение коэффициента отражения  $R = 0$  не достигается. Можно предполагать, что причиной этого оказывается неточное соответствие показателя преломления сульфида цинка  $n_{ZnS}$  значению  $\sqrt{n_{Ge}}$ . Использование более сложного покрытия, для которого нулевое значение коэффициента отражения достигается по определению [13], на практике не позволяет получить  $R = 0$ .

Если просветляющая пленка имеет некоторую неоднородность, то ее показатель преломления изменяется от точки к точке на малую случайную величину, т. е.  $n = \langle n \rangle + \delta n$ . При этом среднее значе-



ние  $\langle n \rangle$  сохраняется постоянным и не зависит от точки наблюдения, а малая поправка  $\delta n$  удовлетворяет равенству  $\langle \delta n \rangle = 0$ . Оптическая толщина слоя в этом случае также оказывается флуктуирующей. Кроме того, оптическая толщина слоя будет флуктуирующей за счет шероховатости поверхностей пленки. Измеряемое значение коэффициента отражения  $R$  будет средним по поверхности пленки, т. е. будет описываться выражением:

$$R = \int_S R(x, y) \Phi(x, y) dx dy. \quad (1)$$

Здесь  $R(x, y)$  – коэффициент отражения в точке  $x, y$ ,  $\Phi(x, y)$  – нормированная функция распределения отклонений оптической толщины слоя по поверхности  $S$ . Если пренебречь поверхностными потерями (например, рассеянием излучения на поверхности), то коэффициент отражения в каждой точке поверхности может быть выражен как:

$$R = 1 - \frac{(1 - r_1^2)(1 - r_2^2)}{1 + r_1^2 r_2^2 + 2r_1 r_2 \cos(2\varphi - \Delta_1 - \Delta_2 + 2\delta\varphi)}, \quad (2)$$

где  $r_1, r_2$  – амплитудные коэффициенты отражения от поверхностей пленки,  $\Delta_1$  и  $\Delta_2$  – сдвиги фаз при отражении,  $\varphi = 2\pi n h / \lambda$ ,  $h$  – толщина пленки, а  $\delta\varphi$  – флуктуационная фазовая добавка, зависящая от положения точки  $x, y$  на поверхности. Так как  $\delta\varphi$  – случайная функция, в интеграле (1) можно перейти от интегрирования по поверхности к интегрированию по  $\delta\varphi$ , т. е. представить интеграл (1) в виде:

$$R = \int_{-\infty}^{\infty} R(\delta\varphi) \Phi(\delta\varphi) d\delta\varphi. \quad (3)$$

Предположим, что функция распределения в (1) есть распределение Коши:

$$\Phi(\delta\varphi) = \frac{\gamma}{\pi(\delta\varphi^2 + \gamma^2)}, \quad (4)$$

где величина  $\gamma$  определяет полосу значимых величин  $\delta\varphi$ . Для вычисления интеграла в (3) представим функцию  $R$  из (2) в виде:

$$R = 1 - (1 - r_1^2)(1 - r_2^2) \times \sum_{n, m=0}^{\infty} (-r_1 r_2)^{n+m} e^{i(n-m)(2\varphi - \Delta_1 - \Delta_2 + 2\delta\varphi)}. \quad (5)$$

Подстановка (4) и (5) в (3) дает возможность найти значение интеграла:

$$R = 1 - (1 - r_1^2)(1 - r_2^2) \times \sum_{n, m=0}^{\infty} (-r_1 r_2)^{2n+m} (e^{imz} + e^{-imz}) e^{-2m\gamma}, \quad (6)$$

где для удобства суммирования изменены индексы и введена величина  $z$ :

$$z = 2\varphi - \Delta_1 - \Delta_2.$$

Проведя суммирование в (6), в результате получим величину среднего коэффициента отражения:

$$R = 1 - \frac{1 - r_1^2 r_2^2 e^{-4\gamma}}{1 - r_1^2 r_2^2} \frac{(1 - r_1^2)(1 - r_2^2)}{1 + r_1^2 r_2^2 e^{-4\gamma} + 2r_1 r_2 e^{-2\gamma} \cos z}. \quad (7)$$

Из (7) видно, что при малых  $\gamma$  среднее значение коэффициента отражения мало отличается от исходного (2), но для точки максимального просветления (т. е. когда отражение должно обращаться в нуль при точном соответствии показателей преломления слоя и подложки необходимому соотношению  $n_{сл} = \sqrt{n_{подл}}$ ) эта поправка оказывается существенной.

При идеальном просветлении коэффициенты отражения на границах пленки должны быть равны  $r_1 = r_2 = r$  и  $z = \pi$ . При подстановке этих значений в соотношение (2) мы действительно получим нуль при пренебрежении малой величиной  $\delta\varphi$ , но при подстановке в (7) получаем:

$$R = \frac{2r^2(1 - e^{-2\gamma})}{(1 + r^2)(1 - r^2 e^{-2\gamma})}. \quad (8)$$

Физический смысл полученного результата (7) и (8) в том, что за счет флуктуаций оптической толщины пленки происходит перераспределение энергии между отраженным и проходящим светом. Рост отражения соответствует уменьшению пропускания. При этом флуктуации оптической толщины включают как флуктуации показателя преломления пленки, так и флуктуации ее геометрической толщины вследствие шероховатости поверхностей. Полная величина  $\gamma$  может быть записана в виде:

$$\gamma = \frac{2\pi}{\lambda} \left( \frac{\delta h}{h} n + h \frac{\delta n}{n} \right). \quad (9)$$

Наличие шероховатости поверхностей пленки и подложки проявляется не только в появлении флуктуаций оптической толщины слоя, но и приводит дополнительно к поверхностным потерям. Эти потери можно описать либо введением поверхностной проводимости [14], либо введением эффективного поглощающего слоя [15]. В обоих случаях появится дополнительное снижение прозрачности просветленной поверхности, но полученный нами результат перераспределения излучения из-за флуктуаций оптической толщины пленки сохранится, так как он связан только с флуктуациями оптической толщины слоя. Следует отметить, что на практике это считается допустимым снижать класс чистоты оп-



тических поверхностей, работающих в инфракрасной области спектра, под тем предположением, что возникающая при этом шероховатость поверхности все равно остается малой по сравнению с длиной волны и, следовательно, рассеяние на такой поверхности остается малым. Полученный результат показывает полную несостоятельность подобных рассуждений. Рассеяние излучения действительно растет не очень сильно, т. е. поверхностные потери оказываются незначительными, но флуктуации оптической толщины возрастают, что и приводит к росту отражения. Эксперимент [16] полностью подтверждает сделанный вывод.

Все современные расчеты просветляющих покрытий базируются на возможности получения спектральных характеристик, не зависящих от спектральной переменной в максимально широкой области. Решение проблемы ахроматизма стало возможным благодаря развитию вычислительной техники, с одной стороны, и развитию техники нанесения многослойных покрытий, с другой стороны. Ясно, что использование многослойных покрытий для целей просветления, хотя это и наиболее разумно с точки зрения ахроматизма, наталкивается на трудности, рассмотренные выше. Поэтому следует более внимательно отнестись к вопросу о необходимости ахроматического просветления для каждого конкретного случая и сделать оценку влияния рассмотренного эффекта.

Принципиально можно выполнить подобный точный расчет и для многослойного покрытия, воспользовавшись выражениями [17], но получающиеся при этом ряды очень сложно просуммировать и результат оказывается чрезвычайно громоздким, что неудобно для проведения анализа с получением конкретных результатов типа (8). Естественно, что для многослойного просветляющего покрытия потери в пропускании только возрастут как за счет дополнительных поверхностных потерь, так и за счет флуктуаций оптической толщины слоев, особенно при увеличении суммарной оптической толщины покрытия. Это наглядно показано в [16] при создании просветляющего покрытия, эффективного в двух инфракрасных спектральных областях. Особенно сильно этот эффект проявляется в оптических системах, имеющих много просветленных поверхностей, так как все потери в этом случае суммируются.

Для проведения анализа видимости оптических свойств многослойного просветляющего покрытия от шероховатости слоев и подложки следует воспользоваться приближенным выражением коэффициента отражения, полученным П. Кардом [3]:

$$R = \sum_{i,j} u_i u_j \cos(2g_{ij}\varphi), \quad (10)$$

где введены следующие обозначения:

$$u_i = \frac{1}{2} \ln \frac{n_i}{n_{i+1}}, \quad (11)$$

$$g_{ij} = g_0 + g_1 + \dots + g_j - (g_0 + g_1 + \dots + g_i),$$

$$\varphi = \frac{\pi \lambda_0}{2 \lambda}, \quad (12)$$

$\lambda_0$  – центральная длина волны,  $\lambda$  – спектральная переменная,  $n_i$  – показатель преломления  $i$ -й среды (слоя).

Учет поверхностных потерь наиболее просто выполнить по [14]. В этом случае функцию  $u_j$  следует записать в виде:

$$u_j = \frac{1}{2} \ln \frac{n_j}{n_{j+1} + z_{j+1}}. \quad (13)$$

Кроме того, при наличии поверхностных потерь в формулу (10) необходимо добавить множители, учитывающие то, что эти потери влекут за собой неравенство коэффициентов отражения во встречных направлениях. Из общих построений П. Карда [3] следует, что полное определение функций  $u_j$  будет следующим:

$$u_j \rightarrow u_j \prod_{r=0}^{j-1} v_r, \quad (14)$$

где  $v_r$  может быть определено равенством:

$$v_j = \frac{n_j + n_{j+1} + z_{j+1}}{n_j + n_{j+1} - z_{j+1}}. \quad (15)$$

Величины  $z_j$  описывают потери на  $j$ -й границе. Согласно [14], эти потери будут складываться из потерь на поглощение (переходы, связанные с уровнями Тамма) и рассеяния излучения на неровностях поверхности. Под поверхностными потерями  $z_j$  мы понимаем рассеяние излучения, что выражается формулой [14]:

$$z_j = 4\pi^2 (n_{j-1} + n_j) (n_{j-1} - n_j)^2 \sigma^2 / \lambda^2, \quad (16)$$

где  $\sigma$  – среднеквадратичная шероховатость  $j$ -й поверхности в покрытии. Приведенная формула близка к выражению, использованному в [15]. Это описание не полно. Следовало бы еще учесть собственное поглощение излучения на поверхности, которым мы пренебрегли из-за его малости по сравнению с рассеянием.

Подстановка (10) в (3) с учетом сделанных поправок дает окончательную формулу для расчета коэффициента отражения при учете поверхностных потерь и флуктуации толщины слоев покрытия из-за их шероховатости:

$$R = \sum_{i,j} u_i u_j e^{-2\epsilon_{ij}} \cos(2g_{ij}\varphi), \quad (17)$$



где

$$\varepsilon_{ij} = \left| \sum_i g_i \gamma_i - \sum_j g_j \gamma_j \right| \varphi \text{ и } \gamma_j = \frac{\delta h_j}{h_j} + \frac{\delta n_j}{n_j}.$$

Из (17) видно, что в области просветления коэффициент отражения никогда не обращается в нуль, т. е. эффект просветления несколько снижается. В этом и проявляется влияние шероховатости поверхностей подложки и интерференционного покрытия. Из (17) также видно, что увеличение числа слоев в просветляющем покрытии приводит к росту остаточного отражения, особенно при больших значениях показателя преломления подложки, что характерно для оптики инфракрасного диапазона, широко использующей полупроводниковые материалы. Полученный результат подтверждает необходимость использования подложек с действительно хорошо отполированными поверхностями. Только при этом условии можно ожидать минимального отражения от просветленной поверхности. Флуктуации толщины слоев интерференционного покрытия растут с толщиной [18]. Это означает, что эффекты, связанные с флуктуациями толщины слоев, будут сказываться больше в инфракрасной области спектра. Тем не менее они наблюдаются и для покрытий, работающих в видимой области.

Необходимо заметить, что флуктуации толщины слоев наиболее сильно проявляются при попытках достичь предельных характеристик пропускания или отражения, т. е. когда одна из этих величин стремится к нулю, а вторая – к единице. При необходимости достижения нуля отражения или пропускания роль флуктуаций резко возрастает. В остальных случаях поправки, связанные с учетом флуктуаций, не представляют интереса, так как они сравнимы с ошибками эксперимента.

#### ЛИТЕРАТУРА

1. Розенберг Г.В. Оптика тонкослойных покрытий. М.: Физматгиз, 1958.
2. Крылова Т.Н. Интерференционные покрытия. Л.: Машиностроение, 1973.
3. Кард П.Г. Анализ и синтез многослойных интерференционных пленок. Таллин: Валгус, 1971.
4. Александров Л.Н., Бочкова Р.В., Коган А.Н., Тихонова Н.П. Моделирование роста и легирования полупроводниковых пленок методом Монте-Карло. Новосибирск: Наука, 1991. 167 с.
5. Бабад-Захрятин А.А. Дефекты покрытий. М.: Энергоатомиздат, 1987. 152 с.
6. Дубровский Г.В. Кинетическая модель трехмерного решеточного газа для неоднородного многослойного адсорбата // Поверхность. 1994. № 3. С. 29–39.
7. Бушуев В.А., Козак В.В. Эволюция корреляции межслойных шероховатостей в процессе формирования многослойных структур // Письма в ЖТФ. 1996. Т. 22. В. 19. С. 29–33.
8. Edwards S.F., Wilkinson D.R. The surface statistics of a granular aggregate // Proc. R. Soc. Lond. A 381. 1982. P. 17–31.
9. Stearns D.G. X-ray scattering from interfacial roughness in multilayer structures // J. Appl. Phys. 1992. V. 71. № 9. P. 4286–4298.
10. Hansen U., Rodgers S., Jensen K.F. Modeling of metal thin film growth: Linking angstrom-scale molecular dynamics results to micron-scale film topographies // Phys. Rev. B. 2000. V. 62. № 4. P. 2869–2878.
11. Castellano C., Krug J. Nonmonotonic roughness evolution in unstable growth // Phys. Rev. B. 2000. V. 62. № 4. P. 2879–2888.
12. Jensen P. Growth of nanostructures by cluster deposition: Experiments and simple models // Rev. Mod. Phys. 1999. V. 71. № 5. P. 1695–1735.
13. Кард П., Несмелов Е., Конюхов Г., Иванов В. Просветление трехслойным симметричным покрытием // Изв. АН Эстонской ССР. 1969. Т. 18. № 2. С. 186–192.
14. Троицкий Ю.В. Проводящая поверхность как модель для описания потерь на границах слоев диэлектрического многослойника // Опт. и спектр. 1988. Т. 64. В. 1. С. 140–145.
15. Carniglia C.K., Jensen D.G. Single-layer model for surface roughness // Appl. Opt. 2002. V. 41. № 16. P. 3167–3171.
16. Гайнутдинов И.С., Гусев А.Г. и др. Двухдиапазонное просветление оптических элементов для тепловизионных приборов // Оптический журнал. 2002. Т. 69. № 4. С. 64–66.
17. Марков Ю.Н. К теории диэлектрических интерференционных покрытий // Опт. и спектр. 1991. Т. 70. В. 2. С. 470–471.
18. Нейгебауэр К.А. Конденсация, образование зародышей и рост тонких пленок // Сб. Технология тонких пленок / Под ред. Л. Майссела и Р. Глэнга. М.: Сов. радио. 1977. Т. 2. С. 9–58.