

✓ ОПТИЧЕСКИЕ ПОСТОЯННЫЕ ТОНКИХ СЕРЕБРЯНЫХ ПЛЕНОК

И. Н. Шкляревский и Т. И. Корнева

По измеренным значениям коэффициентов отражения, пропускания и по толщине осажденных в вакууме на кварцевые подложки тонких серебряных пленок с помощью приближенных формул рассчитаны их оптические постоянные в спектральной области $0.32\div 1$ мкм. Для этих расчетов использовались измеренные ранее величины скачков фаз, возникающих при отражении света от тонких серебряных пленок со стороны подложки. Структура исследованных пленок иллюстрируется электронномикроскопическими снимками.

Введение

В последнее время интерес к изучению оптических свойств тонких пленок значительно возрос [1]. Обнаруженное еще в начале века аномальное поглощение света в тонких пленках благородных металлов [2-4] было теоретически объяснено Максвелл-Гарнетом [5], а затем и другими авторами [6-10]. Можно перечислить десятки экспериментальных работ (например, [1, 11-19]), в которых обсуждается согласие эксперимента с той или иной теорией.

Обычно измеряются спектральные зависимости коэффициентов отражения со стороны воздуха R , подложки R' и пропускания T и на основании тождеств Вольтера [20] рассчитываются произведения мнимой части диэлектрической постоянной пленки ϵ_2 на ее толщину t . В [7, 12, 13] находятся величины $(\epsilon_1 - \epsilon_0)t$, где ϵ_1 — действительная часть диэлектрической постоянной пленки, а $\epsilon_0 = \frac{1}{2}(\mu_0^2 + \mu_2^2)$ — полусумма квадратов показателей преломления воздуха и подложки. Поскольку величина t не могла быть измерена с надлежащей точностью, оптические свойства тонких пленок вынужденно характеризовались спектральными зависимостями $\epsilon_2 t$ и $(\epsilon_1 - \epsilon_0)t$. Величина же t при этом могла быть только весьма ориентировочно указана (весовое количество испаренного или осажденного вещества и т. п.).

Более полно оптические свойства пленок могут быть описаны спектральными зависимостями ϵ_1 и ϵ_2 , а еще лучше — эффективных показателей преломления μ и поглощения μ_k . Пригодные для этого методы Мурмана [21] и Мале [22] чрезвычайно громоздки. Можно, не выходя за рамки приближений [7, 12, 13], основываясь только на возможности точного измерения толщин тонких пленок [23], найти эти зависимости, как это было сделано нами [16, 17] для гранулярных пленок серебра, полученных осаждением на горячую подложку.

Приготовление образцов и измерения

Тонкие серебряные пленки осаждались на кварцевые подложки в вакууме порядка 10^{-5} мм рт. ст. Серебро чистотой 99.99% испарялось из танталовых лодочек. Измерение толщин и электронномикроскопическое

фотографирование велось, как и в [16]. Измерение пропускания и отражения образцов со стороны воздуха и со стороны подложки производилось относительно кварцевой пластинки на спектрофотометре СФ-4 с специальной приставкой в спектральной области $0.32 \div 1$ мкм. Коэффициенты R , R' и T рассчитывались по формулам, приведенным в [17]. Ошибка измерений интенсивностей не превышала 1%.

Результаты измерений и расчетов

Нами была получена серия спектральных кривых R , R' и T для осажденных на кварце серебряных пленок различной толщины. Они в общих чертах повторяют аналогичные кривые, полученные в работах [12, 13, 18]. Это дает нам право не включать их в настоящую статью, тем более, что при необходимости они могут быть восстановлены по приведенным в таблице значениям μ , μx и t с помощью формул работ [7, 24].

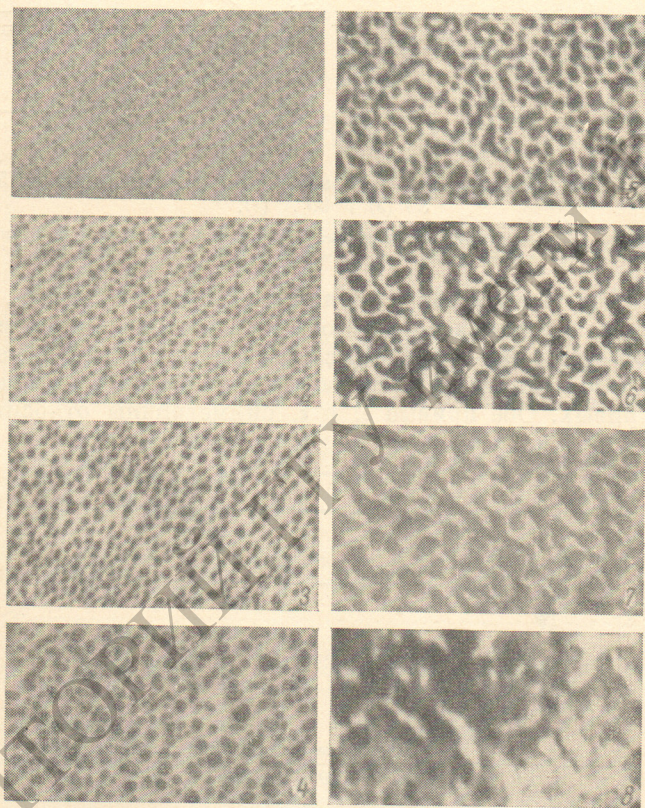


Рис. 1. Электронномикроскопические снимки серебряных пленок; снимки 1—8 соответствуют толщинам 40, 50, 60, 70, 80, 90, 110 и 150 Å.

На рис. 1 приведены электронномикроскопические снимки исследованных образцов. Как следует из этого рисунка, начиная с толщин $70 \div 80$ Å изображения гранул пленок утрачивают дискообразную форму, образуя сложную мозаику. При меньших толщинах толщина пленки и средние диаметры гранул, как и в [16], совпадают, что позволяет сделать вывод о сферической форме последних.

Нам удалось провести измерения R , R' , T и t и сделать соответствующие снимки пленок вплоть до толщин 40 Å. Эти измерения позволяют построить [17] спектральные зависимости ε_2 , которые в общих чертах совпадают с зависимостями $\varepsilon_2 t$ работ [12, 13, 18]. Оказалось возможным

надежно рассчитать спектральные зависимости ϵ_1 начиная лишь с толщин пленок $t=50 \text{ \AA}$. На это мы уже обращали внимание в работе [17].

На рис. 2 приведены спектральные зависимости ϵ_1 и ϵ_2 для серебряных пленок различной толщины. Как уже указывалось, соответствующая формула [17, 24] дает два значения $\epsilon_1: \epsilon_1^+$ и ϵ_1^- . Для данной длины волны

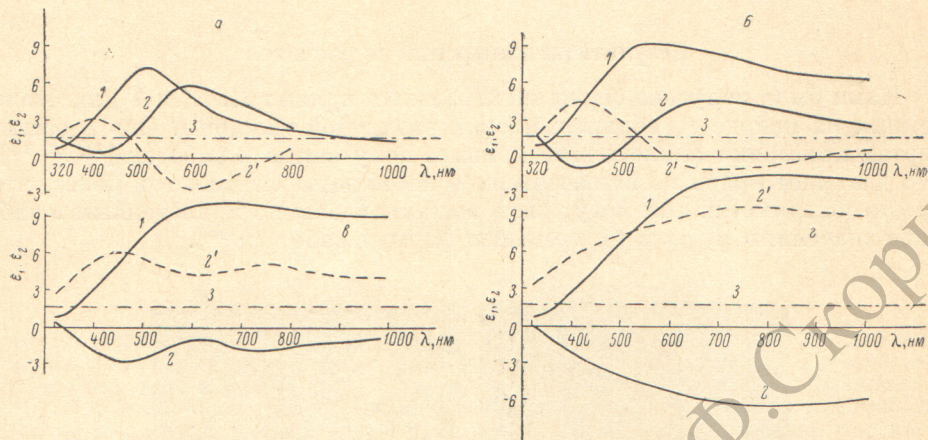


Рис. 2. Спектральные зависимости ϵ_1 и ϵ_2 серебряных пленок толщиной 50 (а), (70) (б), 80 (в) и 90 \AA (г).

1 — ϵ_2 , 2 и 2' — ϵ_1 , соответственно имеющая и неимеющая физический смысл, 3 — ϵ_0 .

физический смысл имеет лишь одна из них. Может случиться, что ϵ_1^+ (или ϵ_1^-) имеет физический смысл в одной области спектра и не имеет в другой. На рис. 2 имеющие физический смысл спектральные зависимости ϵ_1 приведены в виде сплошных, а не имеющие физического смысла — в виде штриховых кривых. Обе кривые ϵ_1^+ и ϵ_1^- симметричны относительно кривой ϵ_0 .

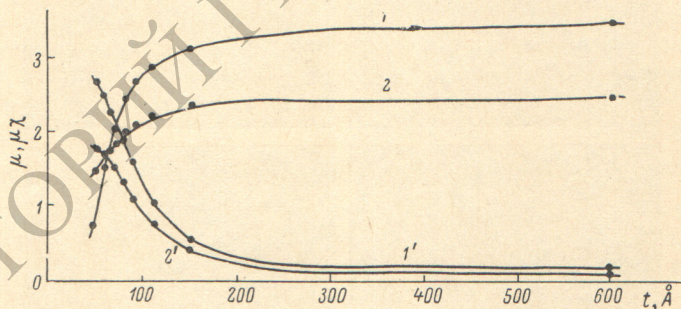


Рис. 3. Найденная интерполяцией толщинная зависимость μ (1, 2) и $\mu\chi$ (1', 2') серебряных пленок.

λ , нм: 1, 1' — 550; 2, 2' — 450.

Для серебряной пленки $t=50 \text{ \AA}$, у которой кривая $\epsilon_2=f(\lambda)$, как и для пленок меньшей толщины, имеет колоколообразную форму, выбор нужных значений ϵ_1 производился, как и в [12, 13, 17]. В случае более толстых пленок, у которых полоса поглощения, теряя резонансный характер, распространяется на всю длинноволновую часть исследованного спектра, для определения правильного значения ϵ_1 были привлечены измерения спектральной зависимости фазовых сдвигов, возникающих при отражении света от тонких серебряных пленок со стороны подложки [25].

В таблице приведены рассчитанные по ϵ_1 и ϵ_2 [17] значения оптических постоянных тонких серебряных пленок. Выборочная подстановка найденных по приближенным формулам оптических постоянных в точные формулы

ШИН
ЯНЫХ
фор-
олны

λ, нм

λ, нм

0) (θ),

(или
той.
при-
виде
кри-

для
ных
тых
сер,
ра,
ния
ни

ких
ен-
лы

т, Å

λ, нм	50		60		70		80		80		110		150	
	ρ	ρ/λ	ρ	ρ/λ	ρ	ρ/λ	ρ	ρ/λ	ρ	ρ/λ	ρ	ρ/λ	ρ	ρ/λ
320	1.38	0.18	1.30	0.25	1.27	0.28	0.72	0.45	0.62	0.57	0.87	0.35	0.79	0.49
340	1.20	0.40	1.10	0.45	0.80	0.58	0.60	0.78	0.46	0.97	0.60	0.63	0.44	0.77
360	1.07	0.60	0.97	0.84	0.89	0.89	0.65	1.14	0.52	1.30	0.50	1.00	0.36	1.15
380	1.10	0.90	1.06	1.12	0.95	1.22	0.73	1.45	0.63	1.50	0.43	1.44	0.32	1.52
400	1.25	1.12	1.24	1.32	1.12	1.45	0.85	1.68	0.74	1.75	0.53	1.70	0.35	1.77
420	1.40	1.30	1.44	1.42	1.30	1.62	0.97	1.87	0.87	1.93	0.55	1.90	0.38	2.00
440	1.60	1.43	1.62	1.60	1.46	1.75	1.12	2.00	1.00	2.00	0.63	2.10	0.40	2.24
460	1.95	1.50	1.82	1.75	1.62	1.85	1.30	2.12	1.16	2.20	0.70	2.20	0.42	2.42
480	2.12	1.50	2.00	1.80	1.83	1.94	1.50	2.20	1.30	2.34	0.80	2.40	0.45	2.62
500	2.35	1.45	2.15	1.80	2.03	1.97	1.70	2.26	1.42	2.46	0.85	2.54	0.48	2.76
520	2.50	1.25	2.30	1.75	2.20	1.95	1.82	2.30	1.51	2.54	0.94	2.70	0.52	2.95
540	2.60	1.06	2.40	1.68	2.28	1.94	1.90	2.34	1.61	2.66	1.03	2.85	0.55	3.10
560	2.60	0.91	2.54	1.55	2.40	1.90	1.95	2.36	1.67	2.75	1.12	2.98	0.58	3.25
580	2.58	0.60	2.62	1.45	2.52	1.83	2.10	2.36	1.75	2.83	1.22	3.10	0.62	3.40
600	2.55	0.55	2.66	1.33	2.55	1.80	2.12	2.36	1.79	2.90	1.30	3.20	0.64	3.50
650	2.40	0.42	2.68	1.16	2.60	1.70	2.10	2.37	1.85	3.02	1.45	3.40	0.72	3.82
700	2.20	0.30	2.70	1.00	2.60	1.60	2.06	2.38	1.88	3.14	1.60	3.60	0.88	4.10
750	2.00	0.22	2.68	0.92	2.55	1.50	2.03	2.37	1.90	3.20	1.65	3.75	0.97	4.33
800	1.80	0.20	2.65	0.83	2.45	1.45	2.02	2.35	1.90	3.20	1.75	3.75	1.10	4.50
850	1.62	0.18	2.65	0.82	2.38	1.40	2.00	2.30	1.90	3.20	1.80	3.73	1.20	4.65
900	—	—	2.65	0.81	2.30	1.40	2.00	2.30	1.92	3.15	1.80	3.72	1.26	4.75
1000	—	—	2.63	0.80	2.20	1.40	2.00	2.30	1.95	3.10	1.80	3.68	1.33	4.85

Мурмана [21] дали совпадение рассчитанных и экспериментальных значений R , R' и T в пределах точности измерений вплоть до толщин в 150 \AA .

Проведенные расчеты μ и $\mu\chi$ по приближенным формулам [7, 24] для полученных при комнатной температуре серебряных пленок в сравнительно узком диапазоне толщин $50 \div 150 \text{ \AA}$ позволили предсказать поведение оптических постоянных и при больших толщинах. Считая, что для толщин порядка 600 \AA μ и $\mu\chi$ такие же, как и для массивного серебра, мы получили значения оптических постоянных в области толщин $150 \div 600 \text{ \AA}$ путем интерполирования, как это показано на рис. 3. Рассчитанные затем по этим константам коэффициенты отражения [21] вполне удовлетворительно совпали с измеренными на специально приготовленных образцах с соответствующими значениями толщин.

В работе [16] мы провели экспериментальную проверку теории Хампе [9] для гранулярных серебряных пленок толщиной $60 \div 380 \text{ \AA}$, осажденных на горячие подложки. В данной работе такая проверка была бы некорректна, как это следует из рис. 1 и 2. Анализ же кривых $\epsilon_2 t$ для пленок меньшей толщины не дал бы ничего нового по сравнению с [12, 18].

Литература

- [1] Colloque sur l'Optique des Couches Minces Silites, Marseille, sept. 1963; J. Phys. Rad., 25, 1, 1964.
- [2] Г. В. Розенберг. Оптика тонкослойных покрытий. ГИФМЛ, М., 1958.
- [3] Н. Мауер. Physik dünner Schichten. Stuttgart, 1950.
- [4] O. S. Heavens. Optical Properties of Thin solid Films. London, 1955.
- [5] J. C. Maxwell-Garnett. Phil. Trans. Roy. Soc., 203, 385, 1904; 205, 237, 1906.
- [6] E. David. Zs. Phys., 114, 389, 1939.
- [7] H. Schorper, Zs. Phys., 130, 565, 1951.
- [8] Г. В. Розенберг. Тр. Моск. вечерн. машиностроит. инст., 2, 290, 1955.
- [9] W. Hampe. Zs. Phys., 152, 476, 1958.
- [10] Н. Мауер. J. Phys. Rad., 25, 172, 1964.
- [11] J. Krautkrämer. Ann. Phys., 32, 537, 1938.
- [12] C. Rasigni. Rev. d'Optique, 41, 383, 566, 625, 1962.
- [13] J. Richard. Ann. de Phys., 9, 697, 1964.
- [14] G. Rasigni, P. Rouard. J. Opt. Soc. Am., 53, 604, 1963.
- [15] R. H. Doremus. J. Appl. Phys., 37, 2775, 1966.
- [16] И. Н. Шкляревский, Т. И. Корнеева. Опт. и спектр., 24, 744, 1968.
- [17] И. Н. Шкляревский, Т. И. Корнеева, К. Н. Зозуля, Опт. и спектр., 27, 332, 1969.
- [18] A. Carlan. C. r. Acad. Sci., 264, B 1595, 1967.
- [19] A. Carlan. C. r. Acad. sci., 269, B 42, 1969.
- [20] H. Wolter. Zs. Phys., 105, 269, 1937.
- [21] H. Murmann. Zs. Phys., 80, 161, 1933.
- [22] D. Malé. Ann. de Phys., 9, 10, 1954.
- [23] И. Н. Шкляревский. Опт. и спектр., 5, 617, 1958.
- [24] И. Н. Шкляревский, О. И. Шкляревский. Опт. и спектр., 27, 654, 1969.
- [25] И. Н. Шкляревский, Т. И. Корнеева, Н. А. Носуленко, А. И. Рыбалка. Опт. и спектр., 29, 190, 1970.

Поступило в Редакцию 16 апреля 1970 г.

РЕПОЗИТОРИЙ Ф. СКОРНИН

Н
дикатр
форму
ослаб
грешн
ческой
 $R(z)$ и
лых,

О
дова
спект
харак
вающ
Одна
тах и
циро
расп
магн
перел
тичес
В ря
инте
ных
имек
пара
приб
тель
свет
крат
двух
ее а
Розе
част
при
гран
каон
новл
тех
теор
Н
няю