

УДК 535.3.2+535.34+535.411.539.238

ОПТИЧЕСКИЕ ХАРАКТЕРИСТИКИ
СВЕРХТОНКИХ МНОГОСЛОЙНИКОВ

А. И. Уоскин

Получены приближенные формулы для амплитудных и энергетических коэффициентов отражения и пропускания, скачков фазы, а также обобщенная система уравнений для нахождения оптических постоянных отдельных слоев сверхтонкого многослойника, состоящего из произвольного числа слоев, общая толщина которых t значительно меньше длины световой волны λ . Рассмотрены некоторые частные случаи, а также вопрос о пределе, до которого целесообразно использовать многослойную модель. Сделано заключение о характере изменения оптических свойств при наращивании слоев многослойника.

В последнее время все большее внимание уделяется изучению физических свойств слоистых систем с характерной толщиной слоев порядка 1 нм. К таким системам относятся лэнгмюровские молекулярные пленки [1], некоторые частично окисленные и неоднородные тонкие покрытия [2, 3], искусственно синтезируемые образцы для изучения сверхпроводящих и туннельных явлений [4], интеркалированные кристаллы [5, 6], представляющие собой последовательно чередующиеся слои исходного кристалла и внедренных в него инородных молекул, и т. д.

Часто оптические свойства таких объектов считают идентичными оптическим свойствам материала с усредненной по объему слоистой системы диэлектрической постоянной [6]. Такой подход не всегда верен, в чем можно убедиться на примере сверхтонкого двухслойника, рассмотренного ранее в [7]. Оптические характеристики реальной слоистой системы могут отличаться не только количественно от соответствующих характеристик, рассчитанных с использованием усредненной диэлектрической постоянной, но и качественно, принимая значения, которые принципиально не могут быть достигнуты у однородных образцов соответствующих толщин [8].

Учет влияния граничных условий при распространении света в сверхтонкой слоистой системе может быть произведен с помощью общих формул [9], которые, однако, в случае большого числа слоев становятся чрезвычайно громоздкими, а при наличии поглощения в слоях — практически недоступными для анализа. В связи с этим в настоящей работе осуществлен вывод приближенных формул для расчета оптических характеристик сверхтонких многослойников с произвольным числом слоев. Формулы выведены во втором приближении по малому параметру t/λ , где t — общая толщина многослойника, а λ — длина световой волны. Аналогичное приближение в случае одно- и двухслойных сверхтонких покрытий оказалось весьма продуктивным: оно дало не только простые и достаточно точные выражения для расчета коэффициентов отражения, пропускания, фазовых скачков и диэлектрической постоянной покрытий [7, 10, 11], но и позволило обосновать ряд новых измерительных методов [7, 12].

Расчет френелевских коэффициентов отражения r и пропускания d проводился путем последовательного наращивания слоев, аналогично тому, как это делалось в случае двухслойника [7]. В указанном выше приближении нетрудно обосновать с помощью метода математической индукции справедливость следующих приближенных формул для многослойника, содержащего N слоев, общая толщина которых $t \ll \lambda$:

$$r = \frac{2(n_0 - n_s) - i \sum_{k=1}^N \left(\gamma_k - i \frac{\tilde{n}_k \gamma_k^2}{2} \right) (\tilde{n}_k - n_s) (n_0 + \tilde{n}_k) - \frac{1}{2} \sum_{i=2}^N \sum_{k=1}^{i-1} \gamma_i \gamma_k (n_0 + \tilde{n}_k) (\tilde{n}_i - n_s) (\tilde{n}_i + \tilde{n}_k)}{2(n_0 + n_s) - i \sum_{k=1}^N \left(\gamma_k - i \frac{\tilde{n}_k \gamma_k^2}{2} \right) (\tilde{n}_k - n_s) (n_0 - \tilde{n}_k) - \frac{1}{2} \sum_{i=2}^N \sum_{k=1}^{i-1} \gamma_i \gamma_k (n_0 - \tilde{n}_k) (\tilde{n}_i - n_s) (\tilde{n}_i + \tilde{n}_k)}, \quad (1)$$

$$d = \frac{4n_0 \prod_{k=1}^N \left(1 - \frac{i\gamma_k \tilde{n}_k}{2} - \frac{\gamma_k^2 n_k^2}{8} \right)}{2(n_0 + n_s) - i \sum_{k=1}^N \left(\gamma_k - i \frac{\tilde{n}_k \gamma_k^2}{2} \right) (\tilde{n}_k - n_s) (n_0 - \tilde{n}_k) - \frac{1}{2} \sum_{i=2}^N \sum_{k=1}^{i-1} \gamma_i \gamma_k (n_0 - \tilde{n}_k) (\tilde{n}_i - n_s) (\tilde{n}_i + \tilde{n}_k)}, \quad (2)$$

где $\gamma_k = 4\pi t_k / \lambda$, а t_k и \tilde{n}_k — толщина и комплексный показатель преломления k -го слоя. Эти выражения получены для нормального падения света на многослойник со стороны среды с показателем преломления n_0 . Слои многослойника пронумерованы последовательно, причем 1-й и N -й слои граничат с диэлектрическими средами, имеющими показатели преломления n_0 и n_s соответственно.

Формулы для энергетических коэффициентов отражения R , пропускания T и скачка фазы δ_R , полученные во втором приближении по параметру γ из соотношений (1) и (2), имеют следующий вид:

$$R = \frac{(n_s - n_0)^2 + 2(n_s - n_0) \sum_{k=1}^N \gamma_k n_k k_k + \frac{1}{4} \sum_{i=1}^N \sum_{k=1}^i (2 - \delta_i^k) \gamma_i \gamma_k B_{ik}}{(n_s + n_0)^2 + 2(n_s + n_0) \sum_{k=1}^N \gamma_k n_k k_k + \frac{1}{4} \sum_{i=1}^N \sum_{k=1}^i (2 - \delta_i^k) \gamma_i \gamma_k B_{ik}}, \quad (3)$$

$$T = \frac{4n_0 n_s}{(n_s + n_0)^2 + 2(n_s + n_0) \sum_{k=1}^N \gamma_k n_k k_k + \frac{1}{4} \sum_{i=1}^N \sum_{k=1}^i (2 - \delta_i^k) \gamma_i \gamma_k B_{ik}}, \quad (4)$$

$$\text{tg } \delta_R = \frac{-n_0 \sum_{k=1}^N (n_k^2 - k_k^2 - n_s^2) \gamma_k + n_0 n_s \sum_{i=1}^N \sum_{k=1}^i (2 - \delta_i^k) \gamma_i \gamma_k n_i k_i}{n_0^2 - n_s^2 - 2n_s \sum_{k=1}^N n_k k_k \gamma_k}, \quad (5)$$

где $B_{ik} = (n_i^2 - k_i^2 - n_0^2)(n_k^2 - k_k^2 - n_s^2) + 4n_i k_i n_k k_k$, δ_i^k — символ Кронекера: $\delta_i^k = \begin{cases} 0 & (i \neq k) \\ 1 & (i = k) \end{cases}$, а n_k и k_k имеют смысл действительной и мнимой части комплексного показателя преломления k -го слоя ($\tilde{n}_k \equiv n_k - ik_k$). Для случая падения

света со стороны среды с n_s соответствующие значения коэффициента отражения R' и скачка фазы $\delta_{R'}$ можно получить из формул (3) и (5), поменяв в них местами индексы 0 и s , а также индексы i и k под знаком двойной суммы. Заметим, что при этом последнее слагаемое в числителе и знаменателе формулы (3) останется неизменным, поскольку $B'_{ik} = B_{ik}$.

Нетрудно видеть, что формулы (3)—(5) являются обобщением соотношений для одно- и двухслойных систем [7, 10, 11], переходя в эти последние при $N=1$ и $N=2$ соответственно.

Из соотношений (3), (4) можно получить обобщенную систему уравнений для нахождения оптических постоянных отдельных слоев, которая имеет следующий вид:

$$\sum_{i=1}^N \gamma_i n_i k_i = n_s \frac{1 - R - T}{T}, \quad (6)$$

$$\sum_{i=1}^N \sum_{k=1}^i (2 - \delta_i^k) \gamma_i \gamma_k B_{ik} = 8n_0 n_s \frac{R + R'}{T} - 4(n_s - n_0)^2. \quad (7)$$

При вычислении оптических постоянных конкретного, например l -го, слоя, эта система легко может быть сведена к квадратному уравнению относительно $n_l^2 - k_l^2$, тогда как произведение $n_l k_l$ определяется уравнением (6). Совместное решение этих последних уравнений приводит к искомым значениям n_l и k_l .

Особого внимания заслуживает часто встречающийся на практике случай, когда многослойник состоит из последовательно чередующихся слоев двух сортов. Если обозначить индексами a и b слои первого и второго сорта, то для многослойника, содержащего p пар слоев a, b , первый из которых граничит со средой n_0 , выражения (3)—(5) можно преобразовать к следующему виду:

$$R = \frac{(n_s - n_0)^2 + 2(n_s - n_0) p n_m k_m (\gamma_a + \gamma_b) + \frac{p^2}{4} B_m (\gamma_a + \gamma_b)^2 + \frac{p}{4} C \gamma_a \gamma_b}{(n_s + n_0)^2 + 2(n_s + n_0) p n_m k_m (\gamma_a + \gamma_b) + \frac{p^2}{4} B_m (\gamma_a + \gamma_b)^2 + \frac{p}{4} C \gamma_a \gamma_b}, \quad (8)$$

$$T = \frac{4n_0 n_s}{(n_s + n_0)^2 + 2(n_s + n_0) p n_m k_m (\gamma_a + \gamma_b) + \frac{p^2}{4} B_m (\gamma_a + \gamma_b)^2 + \frac{p}{4} C \gamma_a \gamma_b}, \quad (9)$$

$$\operatorname{tg} \delta_R = \frac{-n_0 p (\gamma_a + \gamma_b) (n_m^2 - k_m^2 - n_s^2) + n_0 n_s p^2 (\gamma_a + \gamma_b)^2 n_m k_m + p D \gamma_a \gamma_b}{n_0^2 - n_s^2 - 2n_0 p (\gamma_a + \gamma_b) n_m k_m}. \quad (10)$$

Здесь $B_m = (n_m^2 - k_m^2 - n_0^2)(n_m^2 - k_m^2 - n_s^2) + 4n_m^2 k_m^2$, $C = (n_s^2 - n_0^2) \times (n_b^2 - k_b^2 - n_a^2 + k_a^2)$, $D = n_0 n_s (n_b k_b - n_a k_a)$, а показатели преломления n_m и поглощения k_m , определяемые соотношениями

$$n_m^2 - k_m^2 = \frac{(n_a^2 - k_a^2) \gamma_a + (n_b^2 - k_b^2) \gamma_b}{\gamma_a + \gamma_b}, \quad n_m k_m = \frac{n_a k_a \gamma_a + n_b k_b \gamma_b}{\gamma_a + \gamma_b}, \quad (11)$$

соответствуют усредненной по объему многослойника диэлектрической постоянной. Соотношения (8)—(10) по форме близки к соответствующим выражениям для однородного слоя с оптическими постоянными n_m, k_m с толщиной $t_m = p(t_a + t_b)$.

Отличие состоит в присутствии в числителе и знаменателе формул (8)—(10) дополнительного слагаемого, содержащего коэффициент C либо коэффициент D . Нетрудно видеть, что именно этими слагаемыми и должны определяться различия оптических характеристик однородных и неоднородных образцов.

Из формул (8)—(10) следует, что с точки зрения отражения и пропускания многослойник проявляет себя как однородный образец, если равны действительные части диэлектрической постоянной слоев: $n_a^2 - k_a^2 = n_b^2 - k_b^2$. В то же время при регистрации скачка фазы δ_R многослойник ведет себя

как однородный образец лишь при равенстве мнимых частей диэлектрической постоянной слоев: $2n_a k_a = 2n_b k_b$.

Полученные соотношения позволяют сделать заключение также о некоторых общих свойствах сверхтонких многослойников. Так, из формул (3)–(5) следует, что в общем случае величины R , T и δ_R чувствительны к перестановке местами слоев многослойника. При равенстве показателей преломления диэлектрических сред, обрамляющих многослойник, такая перестановка сказывается лишь на скачке фазы. На основании формул (3), (4) легко убедиться также, что для сверхтонких многослойников справедливо тождество Вольтера [13] — $n_0(1-R'-T) = n_s(1-R-T)$, нарушение которого, таким образом, не может являться критерием неоднородности образца.

Важное практическое значение имеет вопрос о пределе, до которого систему целесообразно рассматривать как многослойник. Действительно,

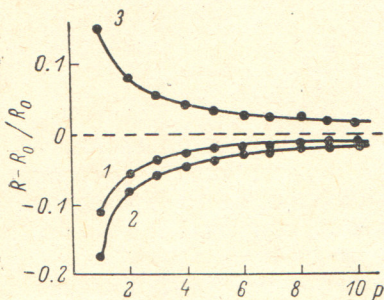


Рис. 1. Зависимости $(R - R_0)/R_0$ от числа пар слоев p при последовательном дроблении многослойника (кривые проведены условно).

$t = p(t_a + t_b) = 15$ нм, $\lambda = 600$ нм, $n_0 = 1$,
 $t_a = t_b$. 1 — $n_a = 2$, $k_a = 0$, $n_b = 0.3$, $k_b = 3$,
 $n_s = 1.5$; 2 — $n_a = 2.5$, $k_a = 0$, $n_b = 0.3$, $k_b = 3$,
 $n_s = 1.5$; 3 — $n_a = 0.5$, $k_a = 2.5$, $n_b = 2.5$,
 $k_b = 0$, $n_s = 1.7$.

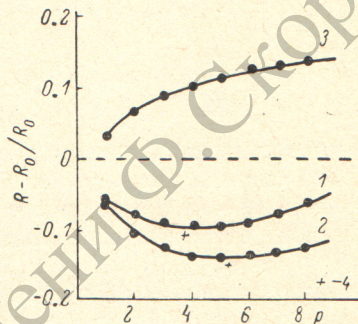


Рис. 2. Зависимости $(R - R_0)/R_0$ от числа пар слоев p при наращивании слоев многослойника (кривые проведены условно).

$t_a = t_b = 1.5$ нм, $\lambda = 600$ нм, $n_0 = 1$. 1–3 соответствуют тем же наборам оптических постоянных, что и на рис. 1; 4 — точки, рассчитанные по соотношениям (12).

из общих соображений следует, что при достаточно малых толщинах слоев оптические свойства многослойной системы можно успешно описать усредненной диэлектрической постоянной, рассматривая многослойник как однородный слой. Общих критериев применимости того или иного модельного представления, по-видимому, не существует. Вопрос должен решаться в каждом конкретном случае количественно в зависимости от оптических постоянных и толщин слоев, из которых состоит система, а также в зависимости от требований к точности расчета коэффициентов отражения, пропускания, скачков фазы. В качестве иллюстрации на рис. 1 показано, как при последовательном «дроблении» многослойника коэффициент отражения R приближается к коэффициенту отражения R_0 слоя той же толщины с усредненными оптическими постоянными n_m и k_m . Рассмотрен многослойник, состоящий из последовательно чередующихся слоев двух сортов. Дробление многослойника, отвечающее росту числа пар слоев p при $t = p(t_a + t_b) = \text{const}$, приводит к довольно быстрому убыванию величины $(R - R_0)/R_0$, которая характеризует различие оптических свойств многослойной и соответствующей ей однородной систем. Используя подобные зависимости, можно решать вопрос о применимости той или иной модели к данной системе. Так, если для коэффициента отражения допускается относительная погрешность 5%, из рис. 1 следует, что в случаях, соответствующих кривым 2 и 3, необходимо использовать многослойную модель, когда система содержит менее 10 слоев. Для случая 1 многослойную модель следует использовать, когда в систему входит менее 6 слоев.

На рис. 2 показано, как изменяется величина $(R - R_0)/R_0$ при последовательном наращивании идентичных пар слоев. В данном случае толщины

отдельных слоев остаются постоянными, а общая толщина многослойника растет при увеличении числа пар слоев p . Как это видно из рис. 2, в случае 3 отличие оптических свойств однородной и многослойной системы возрастает с ростом p , а в случаях 1 и 2 достигает максимального значения при $p \approx 4$ и $p \approx 5$ соответственно. Из анализа формулы (8) следует, что этот экстремум существует лишь при условии $B_m > 0$, причем его положение можно приближенно оценить с помощью простых соотношений вида

$$p_{\text{эксп.}} = \frac{2|n_s - n_0|}{(\gamma_a + \gamma_b)\sqrt{B_m}}, \quad \left(\frac{R - R_0}{R_0}\right)_{\text{экстр.}} = \frac{\gamma_a \gamma_b (n_s + n_0)}{4(\gamma_a + \gamma_b)} \frac{n_b^2 - k_b^2 - n_a^2 + n_a^2}{\sqrt{B_m + 2n_m k_m}}. \quad (12)$$

Как видно из рис. 2, точки, определяемые соотношениями (12), достаточно хорошо описывают положение реальных экстремумов. Зависимости, представленные на рис. 2, позволяют сделать вывод о том, что по мере наращивания двухкомпонентного многослойника различия в оптических свойствах многослойной и однородной систем не убывают, как может показаться на первый взгляд, а напротив возрастают, доходя в некоторых случаях до максимума, определяемого формулами (12).

Литература

- [1] В. К. Сривастава Физика тонких пленок, 7, 340. «Мир», М., 1977.
- [2] А. И. Усоскин, И. Н. Шкляревский. Ж. прикл. спектр., 20, 523, 1974.
- [3] Е. Идчак, Р. Г. Яровая, И. Н. Шкляревский, А. Г. Тимаев. Опт. и спектр., 34, 323, 1973.
- [4] К. Л. Чопра. Электрические явления в тонких пленках. «Мир», М., 1972.
- [5] Л. Н. Булаевский. Усп. физ. наук, 116, 449, 1975.
- [6] J. E. Benda, R. E. Howard, W. A. Phillips. J. Phys. Chem. Solids, 35, 937, 1974.
- [7] А. И. Усоскин, И. Н. Шкляревский. Опт. и спектр., 36, 1025, 1974.
- [8] А. И. Усоскин, И. Н. Шкляревский. Опт. и спектр., 42, 409, 1977.
- [9] П. Х. Беринг. Физика тонких пленок, 1, 91. «Мир», М., 1967.
- [10] И. Н. Шкляревский, О. И. Шкляревский. Опт. и спектр., 27, 654, 1969.
- [11] И. Н. Шкляревский, О. И. Шкляревский, А. И. Усоскин. Опт. и спектр., 29, 1144, 1970.
- [12] И. Н. Шкляревский, А. И. Усоскин. Опт. и спектр., 31, 623, 1971.
- [13] H. Wolter. Zs. Physik, 105, 269, 1937.

Поступило в Редакцию 13 октября 1978 г.
В окончательной редакции 27 августа 1979 г.