

Физические основы и результаты исследования поглощения в тонких пленках германия при легировании их кремнием

Ю. А. Новикова, Г.В. Терещенко

Санкт-Петербургский государственный университет аэрокосмического приборостроения

Аннотация: Приведены теоретические соотношения, которые служат для оценивания поглощающих свойств тонких оптических пленок с использованием функций, определяющих огибающие интерференционных экстремумов в спектре пропускания тонкой оптической пленки на плоскопараллельной прозрачной подложке, а также экспериментальные результаты оценки потерь в инфракрасном диапазоне в пленках Ge, которые легированы Si.

Ключевые слова: интерференция, поглощение, оптика, пленка, показатель преломления.

При синтезе и разработке оптических тонкопленочных покрытий, ориентированных на работу в инфракрасной части диапазона на длинах волн от 2 до 20 мкм достаточно часто используется германий. Это объясняется уникальными характеристиками данного материала, гарантирующими влагостойкость, а также механическую прочность даже при малой толщине покрытия. Известно, что германий обладает высоким показателем преломления и хорошей прозрачностью в инфракрасной области спектра. Однако, пленки германия имеют пониженную плотность и дефекты типа «разорванных связей», что приводит к снижению величины показателей преломления и росту оптических потерь по сравнению с массивными монокристаллами.

Результаты исследований и практической реализации оптических изделий с тонкопленочными интерференционными покрытиями, подтверждают, что оптические потери в тонкопленочных структурах больше, чем потери в монокристаллах одного и того же оптического материала [1,2]. Анализ, приведенный в [3-4], содержит первопричины формирования потерь при распространении электромагнитных волн оптической части спектра. Он подтверждает, что наиболее существенен вклад за счет дифракции на

дефектах, возникающих в пленочной области. Если использовать легирование другим, корректно выбранным пленкообразующим материалом, то можно существенно снизить и величину оптических потерь.

С одной стороны, легирование сопровождается ростом поглощения, с другой стороны приводит к падению габаритов кристаллитов и сокращению возможных дефектов. Таким образом, распространение и дифракция электромагнитной волны происходит в более равномерной среде, то есть в более оптической однородной пленке. Это сразу приводит к уменьшению процесса паразитного рассеяния и снижению потерь полезной мощности электромагнитного излучения.

Таким образом, для исследуемых нами тонких оптических пленок, изготовленных из германия, потери мощности волн вызываются двумя базовыми механизмами. Первый из них – это поглощение в материале, второй – дифракция на неоднородностях внутри пленки. Для чистых пленок германия, без примесей оптические параметры представлены в [5-7].

Первопричинами, лежащими в основе выбора кремния, как материала для легирования, являлось несколько известных физических факторов. Основной из них – близость коэффициентов преломления германия и кремния в значительном интервале длин волн, которые соответствуют инфракрасному излучению. Кроме этого, для реализации эффективного процесса резистивного вакуумного напыления тонких пленок используют одинаковое рабочее давление паров кремния и германия, равное 0,001 Па. Немаловажно и то, что легированная тонкая пленка по своим оптическим и механическим свойствам близка к пленке, изготовленного из чистого германия.

Оценка оптических характеристик производилась методом «плавных огибающих интерференционных экстремумов» спектра пропускания тонкой пленки, нанесенной на плоскопараллельную прозрачную подложку методом

резистивного вакуумного испарения. Подложка при этом обладает заведомо известной зависимостью показателя преломления $n_{\text{подл}}$ от длины волны λ . Дальнейший анализ производился по результатам измерений путем аппроксимационного поиска канонических полиномиальных функций, наиболее близких к кривым, огибающим интерференционные экстремумы спектра пропускания $T_{\text{max}}(\lambda)$. Для вычисления коэффициентов аппроксимации полиномиальных функций был применен метод нелинейной оптимизации методом наименьших квадратов [8,9].

Для иллюстрации методики оценки оптических характеристик с использованием огибающих для экстремумов, результаты расчетов представлены на рис. 1 в виде спектра пропускания пленки с показателем преломления $n_{\text{подл}}(\lambda)=2,7$. В качестве материала подложки использовалось стекло К8. Аппроксимации подвергаются огибающие экстремумов, изображенные пунктиром. Определение показателей преломления $n_{\text{пл}}(\lambda)$ и поглощения $k_{\text{пл}}(\lambda)$ проведем по следующей методике.

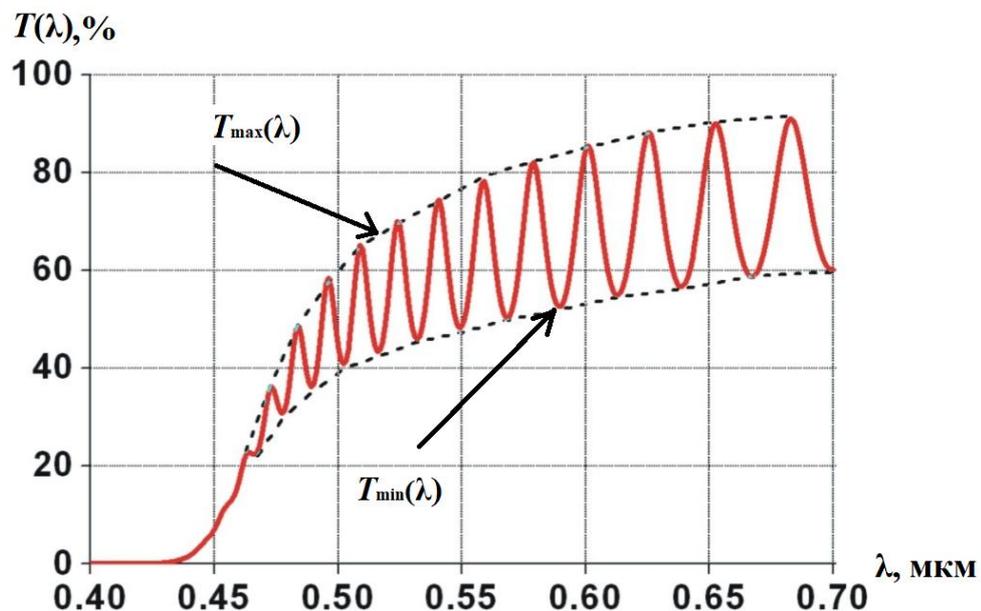


Рис. 1. - Огибающие экстремумов для спектра пропускания тонкой пленки
Зададим в соответствии с [10] функции вида:

$$F(\lambda) = \frac{T_{\max}(\lambda) - T_{\min}(\lambda)}{T_{\max}(\lambda)T_{\min}(\lambda)}; H(\lambda) = \frac{T_{\max}(\lambda) + T_{\min}(\lambda)}{T_{\max}(\lambda)T_{\min}(\lambda)}. \quad (1)$$

При этом выполняются следующие соотношения [10]:

$$t_1(\lambda) = 16n_{\text{пл}}^2(\lambda)n_{\text{подл}}(\lambda); t_2(\lambda) = (n_{\text{пл}}(\lambda) + 1)^3; t_3(\lambda) = (n_{\text{пл}}(\lambda) - 1)^3;$$

$$t_4(\lambda) = (n_{\text{подл}}^2(\lambda) + n_{\text{пл}}(\lambda)); t_5(\lambda) = (n_{\text{подл}}^2(\lambda) - n_{\text{пл}}(\lambda));$$

$$t_6(\lambda) = (n_{\text{подл}}^2(\lambda) - n_{\text{пл}}^2(\lambda)); t_7(\lambda) = n_{\text{пл}}^2(\lambda) - 1; \gamma = 4\pi k_{\text{пл}}(\lambda)d / \lambda;$$

$$T_{\max}(\lambda) = \frac{t_1(\lambda)}{t_2(\lambda)t_4(\lambda)e^{\gamma} - t_3(\lambda)t_5(\lambda)e^{-\gamma} + 2t_7(\lambda)t_6(\lambda)}; \quad (2)$$

$$T_{\min}(\lambda) = \frac{t_1(\lambda)}{t_2(\lambda)t_4(\lambda)e^{\gamma} - t_3(\lambda)t_5(\lambda)e^{-\gamma} - 2t_7(\lambda)t_6(\lambda)}, \quad (3)$$

d – толщина пленки. Используя (2) и (3), получим для $F(\lambda)$ и $H(\lambda)$ формулы:

$$F(\lambda) = \frac{t_6(\lambda)t_7(\lambda)}{4(t_7(\lambda) + 1)n_{\text{подл}}(\lambda)}; H(\lambda) = \frac{t_2(\lambda)t_4(\lambda)e^{\gamma} - t_3(\lambda)t_5(\lambda)e^{-\gamma}}{8(t_7(\lambda) + 1)n_{\text{подл}}(\lambda)}. \quad (6)$$

Из соотношений (6) с учетом (1) получим выражения для оценки показателей преломления и поглощения для пленки

$$n_{\text{пл}}(\lambda) = \sqrt{N(\lambda) + \sqrt{N(\lambda)^2 - n_{\text{подл}}^2(\lambda)}}; N(\lambda) = 2n_{\text{подл}}(\lambda)F(\lambda) + \frac{(n_{\text{подл}}^2(\lambda) + 1)}{2};$$

$$k_{\text{пл}}(\lambda) = \frac{\lambda \ln \beta(\lambda)}{4\pi d}; \beta(\lambda) = 4[(t_7(\lambda) + 1)n_{\text{подл}}(\lambda)H(\lambda) + t_8(\lambda)];$$

$$t_8(\lambda) = \frac{\sqrt{n_{\text{подл}}^2(\lambda)n_{\text{пл}}^4(\lambda)H(\lambda) + t_3(\lambda)(n_{\text{подл}}^4(\lambda) - n_{\text{пл}}^2(\lambda))}}{t_2(\lambda)t_4(\lambda)}.$$

Особый интерес представляла оценка влияния выбора температурного режима для подложки на потери, которые будут характеризовать итоговую комбинацию из пленки с подложкой, а также на потери в отдельном слое пленки. Полученные выше зависимости позволяют рассчитывать показатели преломления и провести расчет по формуле Лоренца относительные величины для плотности пленок, которые задавались в следующем виде [11]:

$$\rho = \frac{n_{\text{пл}}^2(\lambda) - 1}{n_{\text{пл}}^2(\lambda) + 2} \frac{n_{\text{кр}}^2(\lambda) + 2}{n_{\text{кр}}^2(\lambda) - 1},$$

где $n_{\text{кр}}(\lambda)$ – зависимость от длины волны для показателя преломления монокристалла германия, которую для рассматриваемого диапазона длин волн можно найти в [12].

Коэффициент удельного поглощения $\alpha(\text{см}^{-1})$ были определен экспериментально следующим образом. Предварительно измерялось поглощение в подложках $A_{\text{подл}}$. Например, когда наибольший практический интерес представляет задача дальнейшего синтеза покрытия для CO_2 лазера, работающего на длине волны $\lambda_0=10,6$ мкм, то и напыление пленки исследуемого вещества следует производить с полуволновой или волновой оптической толщиной $h=n_{\text{пл}}(\lambda_0)d$. Тогда она не влияет на пропускание, и для нее с высокой точностью можно измерить суммарное поглощение в подложке и пленке $A_{\text{сумм}}$, а затем вычислить поглощение в пленке:

$$A_{\text{пл}}(\lambda_0) = A_{\text{сумм}}(\lambda_0) - A_{\text{подл}}(\lambda_0).$$

Коэффициент удельного поглощения α определяется как:

$$\alpha_{\text{пл}}(\lambda_0) = \frac{A_{\text{пл}}(\lambda_0)}{d},$$

где значение $n_{\text{пл}}(\lambda_0)$ вычисляется по методике, представленной выше.

Изменение концентрации кремния в примеси, из которой была сформирована пленка безусловно оказывает влияние на оптические потери. Так, на рис.2 отражены зависимости потерь, как в общей оптической структуре из подложки с пленкой, так и отдельно взятые в пленке. Как и ожидалось, легирование с ростом концентрации примесного компонента N_{Si} сопровождается и увеличением поглощения, проявляющегося как в пленках, так и в общей структуре «пленка-подложка».

Кривая фактически описывается почти линейной зависимостью. Некоторая «энергетическая яма» для общих потерь проявляется в диапазоне

значений N_{Si} от 1,5% до 2%. Именно данный диапазон следует рекомендовать к технической реализации.

Поэтому для следующего этапа исследований был выбран вариант реализации при $N_{Si} \approx 1.5\%$. Здесь анализировалось влияние температурного режима, выбранного для подложки, как на потери полезной энергии электромагнитных волн в общей структуре «пленка-подложка», так и отдельно в слое тонкой пленки слаболегированного кремнием германия. Характер изменения потерь в функции от температуры подложки показан на рис.3. Здесь «энергетическая яма» для общих потерь проявляется в температурном диапазоне от 180 до 210 °С, хотя на 160 °С наблюдается минимум для потерь в самой пленке.

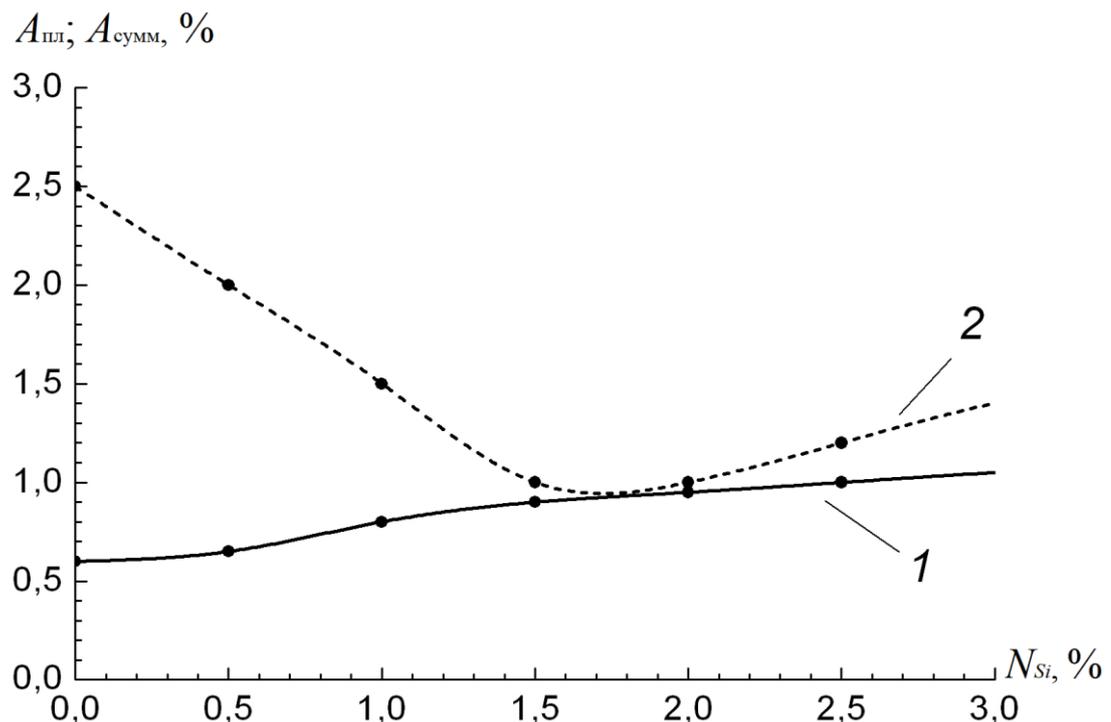


Рис. 2. – Графики зависимостей для потерь в пленке (1) и для общих потерь (2) от доли легируемого материала

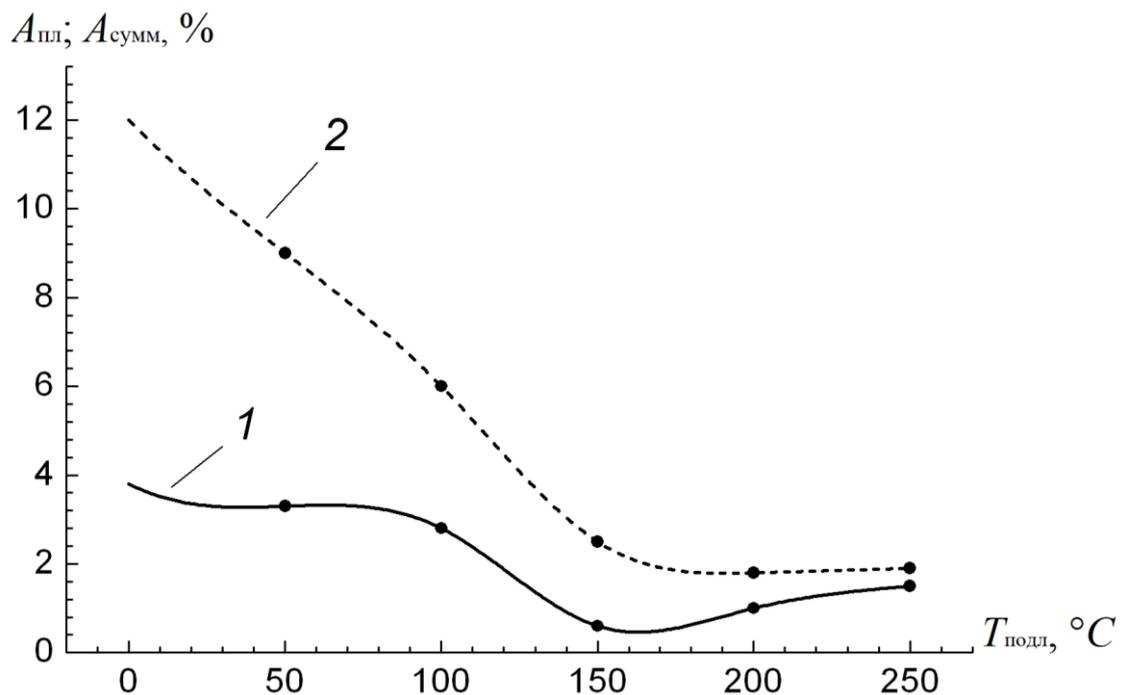


Рис. 3. – Графики зависимостей для потерь в пленке (1) и для общих потерь (2) от температуры

В таблицу сведены результаты исследований при $T_0 + w\Delta T$, где $T_0 = 50^\circ\text{C}$; $\Delta T = 100^\circ\text{C}$, при $w = 0$; $w = 1$ и $w = 2$.

Таблица. Оптические характеристики пленок легированного германия в зависимости от температуры подложки в ходе напыления.

$T_{\text{подл}}, ^\circ\text{C}$	n	p	$A_{\text{Ф}}, \%$	$A_{\Sigma}, \%$	$\alpha, \text{см}^{-1}$
50	3,8	0,96	0,6	3,1	75
150	3,97	0,98	0,3	1,2	30
250	4	1	0,4	2,8	35

Представлены математические соотношения, позволяющие проводить оценку показателя преломления и поглощения в тонких пленках, базирующиеся на применении метода измерений с использованием огибающих для экстремумов спектра пропускания. Кроме этого, получены

следующие рекомендации к технической реализации оптических тонкопленочных структур, ориентированных на использование при работе с излучением CO₂ лазера, которые формируются из пленок на основе германия, который легируется кремнием. Показано, что для минимизации потерь в этом случае следует рекомендовать малую долю примесей кремния и относительно высокую температуру, при которой реализуется процесс напыления. Представленную методику исследований можно успешно использовать и для других оптических материалов [13], где также важно оценивать условия, при которых уменьшается величина потерь.

Литература (References)

1. Kats M. A., Capasso F. Optical absorbers based on strong interference in ultra-thin films // *Laser and Photonics Reviews*. 2016. 10(5). Pp. 735-749.
2. Bosman H., Lau Y. Y. & Gilgenbach R. M. Microwave absorption on a thin film // *Applied Physics Letters*. 2003. 82(9). Pp.1353-1355.
3. Pleshchinskii N. B., Tumakov D. N. Analysis of electromagnetic wave propagation through a layer with graded-index distribution of refraction index// *Progress in Electromagnetics Research Symposium*. 2012. Moscow, 19–23 August 2012. pp. 425-429.
4. Bennett, J.M. Optical scattering and absorption losses at interfaces and in thin films // *Thin Solid Films*. 1985. 123. Pp. 27-44.
5. Dan-dan L., Liu H., Jiang C., Leng J., Zhang Y., Zhao Z., Zhuang K., Jiang Y., Ji Y. Temperature dependence of the infrared optical constants of germanium films// *Thin Solid Films*. 2015. 592. Pp. 292-295.
6. Denton R., Tomlin S. Optical Properties of Thin Germanium Films// *Australian Journal of Physics*. 1972. 25. Pp.743-748.

7. Carney D. J., Magnusson R. Refractive index of sputtered germanium films in the 2.5-13 μm infrared spectral region// Opt. Mater. Express. 2019. 9. Pp. 3680-3690.
8. Jongho Im., Morikawa K., Hyung-Tae H. A least squares-type density estimator using a polynomial function // Computational Statistics & Data Analysis. 2019. 144. p.106882.
9. Haji-Ali A., Nobile F., Tempone R., Wolfers S. Multilevel weighted least squares polynomial approximation // ESAIM:M2AN. 2020. 54 (2). Pp. 649-677.
10. Kotlikov E. N., Novikova Yu. A. Investigation of the optical films $\text{Ba}_x\text{Mg}_{1-x}\text{F}_2$ // Opt. and spectroscopy. 2014. 117(3). Pp. 48-52.
11. Oughstun K. E., Cartwright N.A. On the Lorentz-Lorenz formula and the Lorentz model of dielectric dispersion // Opt. Express. 2003. 11. Pp. 1541-1546.
12. Kreibig U., Vollmer M. Optical Properties of Metal Clusters. Berlin: Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 1995. 535 p.
13. Kotlikov E. N., Novikova Yu. A., Yurkovets E. V. Method for determining the optical constants of films on absorbing substrates// J. Opt. Technol. 2018. 85. Pp. 651-655.