

斜角入射沉积法制备渐变折射率薄膜的折射率分析

沈自才^{1,2)†} 孔伟金^{1,2)} 刘世杰^{1,2)} 沈建^{1,2)} 邵建达¹⁾ 范正修¹⁾

1) 中国科学院上海光学精密机械研究所, 上海 201800)

2) 中国科学院研究生院, 北京 100039)

(2005 年 10 月 26 日收到, 2006 年 1 月 18 日收到修改稿)

斜角入射沉积法是一种制备薄膜的新颖方法, 它可以用来制备渐变折射率薄膜. 本文首先探讨了膜料的沉积入射角为 α , 薄膜柱状生长倾斜角为 β 时的薄膜的填充系数; 之后利用 drude 理论, 分析研究了斜角入射沉积法制备渐变折射率薄膜的折射率与薄膜的入射角和生长方向的关系.

关键词: 斜角入射沉积, 渐变折射率, 填充系数

PACC: 2100M, 6855, 8115G

1. 引言

渐变折射率薄膜是指薄膜的折射率沿着薄膜表面的法线方向逐渐变化, 而在水平方向上保持不变. 它通常也被称为非均匀薄膜.

除了利用双源共蒸法^[1]和磁控反应溅射法^[2]来实现渐变折射率薄膜的制备外, 斜角入射沉积法也可以用来制备渐变折射率薄膜. 斜角入射沉积法是通过改变膜料倾斜入射沉积的角度, 从而改变沉积薄膜的生长方向和致密度, 同时改变膜层的折射率. 与两种膜料混合蒸发和单一膜料反应沉积相比, 斜角入射沉积时膜层折射率变化范围相对较小.

Robbie 和 Brett^[3]首次于 1997 年对斜角入射沉积法制备“雕刻”薄膜进行了探讨, 指出吸附原子的扩散和原子的阴影是斜角入射沉积的主要生长机理. Robbie 等^[4]探讨了入射角和膜层中柱状生长方向之间的关系以及如何实现对膜层结构在三维方向上的控制. 基于以上的研究, Robbie 等^[5]用斜角入射沉积法, 利用一种材料制备出了多层 rugate 光学滤光片. Ovidiu Toader 和 Sajeev John 等^[6]利用斜角入射法制备出了可用于光学称的三维光子带隙晶体材料. 但是他们都没有研究如何利用斜角入射来获得渐变折射率薄膜. 后来, Kennedy 和 Brett 等^[7]利用斜角沉积技术在玻璃上镀制了 SiO_2 渐变折射率增透膜, 获得了较好的增透性能; Popta 等^[8]研究了利用

斜角入射法制备的多孔螺旋薄膜的光学特性并有望进一步应用于显示器件上. 作者也曾用不同的理论对单一膜料的折射率与填充密度的关系进行了探讨^[9].

虽然对利用斜角入射沉积法制备渐变折射率薄膜已经进行了一些初步的探索, 但是没有对薄膜的折射率与薄膜的沉积角度与生长微结构的关系进行系统的探讨. 本文将通过分析薄膜的微结构, 进而对渐变折射率薄膜的折射率与薄膜的微结构、膜料的沉积角度和薄膜的生长角度的关系进行全面分析.

2. 填充系数的理论分析

假设在沉积的过程中的某个时刻, 沉积入射角为 α 时, 薄膜的生长方向为 β ; 薄膜的生长假设为柱状倾斜生长, 在二维平面 xz 内, 薄膜的沉积示意图见图 1, 垂直于 xz 方向, 沉积薄膜是相同的. 假设单位时间内薄膜的生长高度为 h , 柱状宽度为 d , 空隙宽度为 l .

由于遮挡效应, 当蒸发粒子入射沉积时, 空隙中有一部分将被倾斜柱所遮挡, 留下一片遮挡区域; 同时亦有一部分被沉积粒子所填充, 填充区域示意图见图 2.

下面对其填充系数进行分析.

沉积的倾斜柱在二维方向上的面积为

$$S_1 = dh, \quad (1)$$

† E-mail: zicaishen@siom.ac.cn

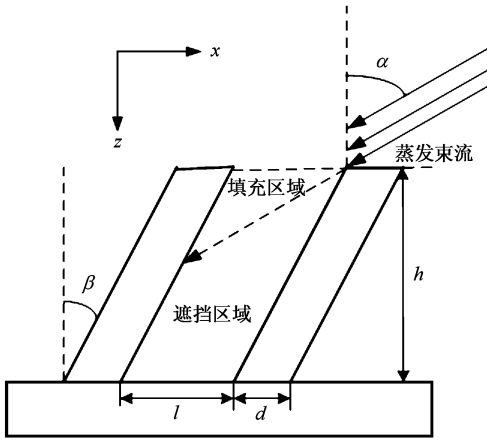


图 1 斜角入射沉积示意图

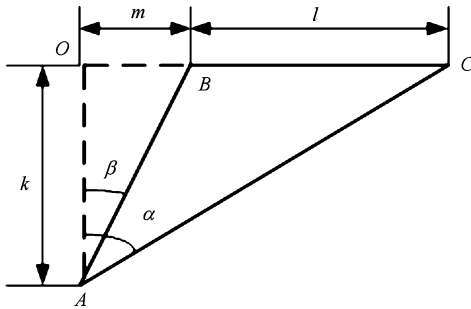


图 2 填充区域示意图

空隙总的面积为

$$S = lh, \quad (2)$$

对于空隙填充区域的面积,由图 2 知,

$$\tan \alpha = \frac{l+m}{k}, \quad (3)$$

$$\tan \beta = \frac{m}{k}. \quad (4)$$

所以,填充区域面积为

$$S_2 = \frac{l^2}{2(\tan \alpha - \tan \beta)}, \quad (5)$$

则遮挡区域的面积为

$$S_3 = S - S_2 = lh - \frac{l^2}{2(\tan \alpha - \tan \beta)}, \quad (6)$$

所以被膜料填充的总面积为

$$S_s = S_1 + S_2 = dh + \frac{l^2}{2(\tan \alpha - \tan \beta)}, \quad (7)$$

剩余空隙面积为

$$S_v = S_3 = lh - \frac{l^2}{2(\tan \alpha - \tan \beta)}, \quad (8)$$

所以,在沉积入射角为 \$\alpha\$,生长方向为 \$\beta\$ 时的薄膜的填充系数为

$$f = \frac{S_s}{S_s + S_v} = \frac{2dh(\tan \alpha - \tan \beta) + l^2}{2h(l + d)(\tan \alpha - \tan \beta)}. \quad (9)$$

3. 薄膜折射率的 Drude 分析

由 Drude 理论分析^[10]知,薄膜的介电常数可以表示为

$$\epsilon = \sum_{x=1}^k c_x \epsilon_x, \quad (10)$$

这里, \$c_x\$ 表示第 \$x\$ 种材料的物质的量的百分比浓度, \$\epsilon_x\$ 表示第 \$x\$ 种物质的介电常数.

若膜料颗粒的单分子占有的体积为 \$V_s\$, 填充气体的单分子占有的体积为 \$V_v\$, 膜料单分子的介电常数为 \$\epsilon_s\$, 填充气体的介电常数为 \$\epsilon_v\$, 则有膜料颗粒的物质的量的百分比浓度为

$$c_s = \frac{S_v/V_s}{S_s/V_s + S_v/V_v}, \quad (11)$$

填充气体的物质的量的百分比浓度为

$$c_v = \frac{S_s/V_v}{S_s/V_s + S_v/V_v}, \quad (12)$$

其中

$$\frac{S_v}{V_v} = \frac{2lh(\tan \alpha - \tan \beta) - l^2}{2(\tan \alpha - \tan \beta)V_v}, \quad (13)$$

进一步可以得到

$$c_s = \frac{l^2 V_v + 2dhV_v(\tan \alpha - \tan \beta)}{l^2(V_v - V_s) + 2h(\tan \alpha - \tan \beta)(dV_v - lV_s)}, \quad (14)$$

$$c_v = \frac{2lhV_s(\tan \alpha - \tan \beta) - l^2 V_s}{l^2(V_v - V_s) + 2h(\tan \alpha - \tan \beta)(dV_v - lV_s)}. \quad (15)$$

由于薄膜的介电常数可以表示为 \$\epsilon = c_s \epsilon_s + c_v \epsilon_v\$, 有

$$\epsilon = \frac{\epsilon_s V_v f + \epsilon_v V_s (1-f)}{V_v f + V_s (1-f)}, \quad (16)$$

即

$$\epsilon = \frac{[l^2 V_v + 2dhV_v(\tan \alpha - \tan \beta)]\epsilon_s}{l^2(V_v - V_s) + 2h(\tan \alpha - \tan \beta)(dV_v - lV_s)} + \frac{[2lhV_s(\tan \alpha - \tan \beta) - l^2 V_s]\epsilon_v}{l^2(V_v - V_s) + 2h(\tan \alpha - \tan \beta)(dV_v - lV_s)}, \quad (17)$$

又由于折射率与介电常数的关系为 \$n = \sqrt{\epsilon}\$, 可以得到 \$n^2(x) = \epsilon(x)\$,

即

$$n = \left\{ \begin{array}{l} \frac{[l^2 V_v + 2dhV_s(\tan\alpha - \tan\beta)]\epsilon_s}{l^2(V_v - V_s) + 2h(\tan\alpha - \tan\beta)dV_v - lV_s} \\ + \frac{[2lhV_s(\tan\alpha - \tan\beta) - l^2 V_s]\epsilon_v}{l^2(V_v - V_s) + 2h(\tan\alpha - \tan\beta)dV_v - lV_s} \end{array} \right\}^{1/2}, \quad (18)$$

其中, V_v, V_s, ϵ_v 和 ϵ_s 为已知常数, 因此只要测得在不同沉积角度 α 下, d, l, h 以及 β 的数值就可以由上式得到薄膜的折射率的大小.

4. 讨 论

以上利用 drude 理论对斜角入射沉积法制备渐变折射率薄膜的折射率问题进行了分析. 在分析过程中, 将空隙中的填充气体看作一种物质考虑. 只要由实验获得膜料的入射角度 α 与薄膜生长方向 β 以

及 d, l, h 的关系, 通过控制膜料的沉积入射角度就可以制备出理想的渐变折射率薄膜.

在薄膜折射率的分析过程中, 也可采用近似关系式 $n = fn_s + (1-f)n_v$ 来分析薄膜的折射率^[11], 此时

$$n = n_s \frac{2dh(\tan\alpha - \tan\beta) + l^2}{2h(l + d)(\tan\alpha - \tan\beta)} + n_v \frac{2lh(\tan\alpha - \tan\beta) - l^2}{2h(l + d)(\tan\alpha - \tan\beta)}, \quad (19)$$

即

$$n = \frac{2h(\tan\alpha - \tan\beta)(dn_s - ln_v) + l^2(n_s - n_v)}{2h(l + d)(\tan\alpha - \tan\beta)}. \quad (20)$$

在分析 h 的大小时, 可以用单位时间沉积的速度 (nm/s) 大小来表示.

- [1] Shen Z C, Wang Y J, Fan Z X, Shao J D 2005 *Acta Phys. Sin.* **54** 295 (in Chinese) [沈自才、王英剑、范正修、邵建达 2005 物理学报 **54** 295]
- [2] Shen Z C, Shao J D, Wang Y J, Fan Z X 2005 *Acta Phys. Sin.* **54** 4842 (in Chinese) [沈自才、邵建达、王英剑、范正修 2005 物理学报 **54** 4842]
- [3] Robbie K, Brett M J 1997 *J. Vac. Sci. Technol. A* **15** 1460
- [4] Robbie K, Sit J C, Brett M J 1997 *J. Vac. Sci. Technol. A* **16** 1115
- [5] Robbie K, Hnatiw A J P, Brett M J *et al* 1997 *Electronics Lett.* **33** 1213

- [6] Toader O, John S 2001 *Science* **292** 1133
- [7] Kennedy S R, Brett M J 2003 *Applied optics* **42** 4573
- [8] Popta A C, Sit J C, Brett M J 2004 *Applied optics* **43** 3632
- [9] Shen Z C, Shao J D, Wang Y J, Fan Z X 2005 *Acta Phys. Sin.* **54** 3069 (in Chinese) [沈自才、邵建达、王英剑、范正修 2005 物理学报 **54** 3069]
- [10] Jacobsson R 1975 *Physics of thin films* (New York: Academic Press) 56
- [11] Macleod H A 2001 *Thin-Film Optical Filters* (London: Institute of Physics Publishing) 464

Refractive index analysis of graded index coatings prepared by glancing angle deposition

Shen Zi-Cai^{1,2)†} Kong Wei-Jin^{1,2)} Liu Shi-Jie^{1,2)} Shen Jian^{1,2)} Shao Jian-Da¹⁾ Fan Zheng-Xiu¹⁾

¹ *Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, Shanghai 201800, China*

² *Graduate School of the Chinese Academy of Sciences, Beijing 100039, China*

(Received 26 October 2005 ; revised manuscript received 18 January 2006)

Abstract

Glancing angle deposition is a novel method for the preparation of coatings, it can be used to prepare graded index coatings. In this paper, the packing factor of the coatings prepared by glancing angle deposition is analyzed under the conditions that the flux arrival angle of coating material is α and the columnar microstructure inclination angle of coatings is β . And then the relation between the refractive index of the coatings, the flux arrival angle and the columnar inclination angle is discussed based on Drude theory.

Keywords : glancing angle deposition, graded index, packing factor

PACC : 2100M, 6855, 8115G