

УДК 536.3

## **Изменение оптических свойств системы “оксидная пленка–металл” в процессе роста пленки: компьютерное моделирование\***

**С.П. Русин**

*Объединенный институт высоких температур РАН, Москва*

E-mail: sprusin@yandex.ru

Представлены результаты компьютерного моделирования отражательных свойств системы оксидная пленка–металл в процессе окисления в воздушной среде. В качестве исходных данных использовались комплексные показатели преломления для оксидной пленки и металла. Рассматриваются тонкие пленки (толщина пленки соизмерима с длиной волны падающего излучения) и толстые пленки (толщина пленки много больше длины волны падающего излучения). Для тонкой пленки выделен параметр, который характеризует цикличность отражательной способности системы в процессе роста толщины пленки. Показано, что параметр цикличности не зависит от оптических свойств металлической подложки. В воздушной среде этот параметр определяется комплексным показателем преломления пленки, ее толщиной и направлением падающего излучения. Для толстой пленки приведены соотношения для оценки отражательной способности системы в процессе роста оксидной пленки.

**Ключевые слова:** оксидная пленка, эффективная отражательная способность, рост толщины пленки.

### **Введение**

Теория оптических слоистых сред широко применяется при проектировании селективных покрытий в солнечной энергетике, в объектах авиационной и космической техники, при создании просветляющих покрытий, при проектировании оптических фильтров и антиотражающих поверхностей [1–4]. Так, например, с помощью тонких пленок создаются просветляющие покрытия, которые уменьшают отражение поверхности материала для выбранного диапазона длин волн или, наоборот, увеличивают его отражательную способность. При определенных условиях многослойная система может служить фильтром, который пропускает либо отражает выделенные участки спектра [3]. Изменяя оптические свойства многослойных систем, можно контролировать толщину пленок с высокой точностью [1]. При определении температуры по излучению представляет интерес изменение оптических свойств материалов при их взаимодействии с окислительными средами [5, 6]. Как известно, при нагреве в окислительной среде на поверхности материалов, в частности, титана, начинает расти полупрозрачная оксидная пленка и оптические свойства системы “оксидная пленка–титан” существенно меняются. Экспериментально этот процесс исследовался в [7, 8], где было отмечено появление осцилляций отражательной способности образца в процессе

---

\* Работа выполнена при частичной финансовой поддержке РФФИ (грант 07-08-00708-а).

окисления и возникновение динамического параметра — расстояния между максимумами (минимумами) зависимости отражательной способности системы “оксидная пленка–титановая подложка” от времени.

Цель настоящей работы — на примере металла (титана) численно смоделировать излучательные и отражательные свойства системы “оксидная пленка–металл” в процессе роста пленки, а также выявить возможность оценки толщины пленки по отражательной способности системы. Рассматриваются два типа моделей: модель трехслойной системы, когда интерференционными эффектами пренебречь нельзя (толщина пленки соизмерима с длиной волны падающего излучения, thin film), и когда интерференционные эффекты пренебрежимо малы (толщина пленки много больше длины волны падающего излучения, thin film). Полагалось, что титановый образец находится в воздушной оптически прозрачной среде. Численно исследовалось влияние роста пленки из оксида титана на оптические характеристики системы “оксидная пленка–титан”.

## 1. Основные расчетные соотношения

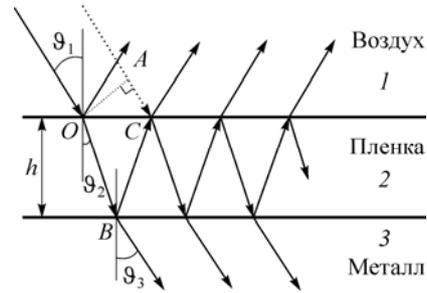
Полагалось, что слой оксидной пленки титана плоскопараллельный, оптически однородный и изотропный. Поверхности раздела: “воздух–оксидная пленка” и “оксидная пленка–металл” оптически гладкие. Дифракционные эффекты на краях отсутствуют. Оксидная пленка и металлическая подложка находятся при одинаковой температуре. Полагалось также, что при регистрации экспериментальных данных собственное излучение системы “оксидная пленка–металл” с помощью модулятора предварительно определено и исключено из потока отраженного излучения (см., например, [7, 8]). Толщина металлической подложки такова, что ее можно принять за полубесконечную среду. Индексы 1, 2 и 3 относятся к воздушной среде, оксидной пленке и металлической подложке соответственно, а индексы tn (thin) и tk (thick) обозначают тонкую и толстую пленку. В пределах применимости формул Френеля оптические свойства каждой  $i$ -ой среды характеризуются своим комплексным показателем преломления (оптическими параметрами)  $m_i = n_i - ik_i$ , где  $n_i$  — показатель преломления,  $\kappa_i$  — показатель поглощения среды соответственно.

### 1.1. Оптически тонкая пленка: толщина пленки соизмерима с длиной волны падающего излучения

Для таких пленок оптические свойства системы оксидная пленка–металл в значительной степени зависят от эффектов интерференции. Первоначально рассматривается случай, когда оксидная пленка не поглощает излучение ( $\kappa_2 = 0$ ,  $m_2 \equiv n_2$ ). В дальнейшем это ограничение при падении внешнего излучения в направлении нормали к поверхности пленки будет снято. При распространении света в среде его фазовая скорость  $u = c/n$  уменьшается ( $c$  — скорость света в вакууме) в соответствии с величиной показателя преломления. Полагалось, что падающая на пленку плоская монохроматическая волна электрической напряженности  $E$  распространяется в среде с фазовой скоростью  $u$  в положительном направлении оси  $z$  в виде гармонических колебаний вида  $E_0 \cos[\omega(t - z/u)] = E_0 \cos(\omega t - k_m z)$ , где  $t$  — время,  $\omega$  — циклическая частота,  $k_m = nk$ ,  $k = 2\pi/\lambda$  — волновое число в вакууме,  $E_0$  — амплитуда [1, 2]. Схема процесса взаимодействия падающей волны с системой “оксидная пленка–металлическая подложка” представлена на рис. 1.

Рис. 1. Схематическое изображение системы “оксидная пленка-металл” в воздушной среде.

$\vartheta_1$  и  $\vartheta_2$  — углы падения и преломления при переходе излучения из воздушной среды в оксидную пленку,  $\vartheta_3$  — угол преломления при переходе из оксидной пленки в металл.



Как известно, при прохождении волны через границу двух сред изменяется не частота источника волн, а длина волны. Поэтому в дальнейшем, как это принято при рассмотрении интерференции, будет полагаться, что излучение в системе распространяется со скоростью света, а длина пути излучения в среде увеличивается пропорционально ее показателю преломления (в оптике это произведение носит название оптического пути). При этом все оптические пути в системе соизмеряются с длиной волны  $\lambda$  в вакууме или в воздухе, т. к. в воздушной среде в рассматриваемом спектральном диапазоне с большой точностью  $n_1 \equiv n_1 \equiv 1$ . При падении плоской монохроматической волны из воздуха на тонкую полупрозрачную пластину (оксидную пленку) в результате многократных преломлений и отражений в системе “оксидная пленка–металлическая подложка” происходит пространственное разделение этой волны на множество волн, отраженных в окружающее пространство (рис. 1). Эти волны имеют ту же частоту, что и падающая волна, и распространяются параллельно друг другу. При этом каждая отраженная волна отличается от соседней на одну и ту же разность хода  $\Delta z$  и, следовательно, на одну и ту же разность фаз  $\beta$ . После пространственного соединения этих волн, например, с помощью линзы, можно наблюдать явление интерференции. Поскольку при фиксированной длине волны  $\lambda$  толщина пленки в процессе окисления изменяется, то с течением времени должны иметь место как максимумы, так и минимумы интенсивностей отраженного излучения и, следовательно, отражательной способности системы. Как это следует из рис. 1, разность хода между соседними лучами можно представить как разность оптических путей  $\Delta z_{\text{vac}} = (OB+BC)n_2 - ACn_1 = 2n_2h\cos\vartheta_2$ . Тогда разность фаз

$$\beta = k\Delta z_{\text{vac}} = 4\pi n_2 h \cos \vartheta_2 / \lambda. \quad (1)$$

В зависимости от типа искомого параметра (1) удобно записывать в виде

$$\beta = 4\pi n_2 h \cos \vartheta_2 \nu \quad (1')$$

или

$$\beta = 4\pi n_2 \cos \vartheta_2 \xi, \quad (1'')$$

где  $\nu = 1/\lambda$  — волновое число,  $\xi = h/\lambda = \nu h$ .

В комплексном виде разность фаз представлялась фазовым множителем  $q = \exp(-i\beta)$ . Для упрощения преобразований полагалось, что волна, падающая на пленку, имеет единичную амплитуду. Тогда амплитудный коэффициент отражения  $r$  системы “оксидная пленка–металл” с помощью метода многократных отражений может быть записан в виде ряда [2]:

$$\begin{aligned} r &= r_{12} + t_{12}t_{21}r_{23}q + t_{12}t_{21}r_{21}r_{23}^2q^2 + t_{12}t_{21}r_{21}^2r_{23}^3q^3 + \dots = \\ &= r_{12} + t_{12}t_{21}r_{23}q(1 + r_{21}r_{23}q + r_{21}^2r_{23}^2q^2 + \dots) = \\ &= r_{12} + \frac{t_{12}t_{21}r_{23} \exp(-i\beta)}{1 - r_{21}r_{23} \exp(-i\beta)}, \end{aligned} \quad (2)$$

где  $r_{ij}$  — амплитудные коэффициенты отражения при прохождении излучения из  $i$ -й среды в  $j$ -ю среду;  $t_{12} = 1 - r_{12}$ ,  $t_{21} = 1 - r_{21}$ . В общем случае  $r_{ij}$  — комплексные величины.

С помощью соотношений  $r_{ij} = -r_{ji}$  выражение (2) преобразовывалось к более компактной форме, которая носит название формулы Эйри (Airy's formula) [1]:

$$r = \frac{r_{12} + r_{23} \exp(-i\beta)}{1 + r_{12}r_{23} \exp(-i\beta)}. \quad (3)$$

Как отмечено в монографии [1], уравнения Максвелла позволяют получить решение независимо от того, в вещественной или комплексной форме будут заданы оптические коэффициенты  $m_i$ . Поэтому для проводящих сред решение (3) также будет справедливо при замене вещественного показателя преломления  $n_2$  на комплексный показатель преломления  $m_2 = n_2 - i\kappa_2$ . Вместе с тем, согласно с законом Снелла, должно выполняться соотношение:  $n_1 \sin \mathcal{Q}_1 = m_2 \sin \mathcal{Q}_2$ . Поскольку в нашем случае  $n_1$ ,  $\sin \mathcal{Q}_1$  — вещественные величины, а  $m_2$  величина комплексная, то  $\sin \mathcal{Q}_2$ , а следовательно, и  $\cos \mathcal{Q}_2$  должны быть комплексными величинами. Однако, для  $\mathcal{Q}_1 = 0$  величина  $\mathcal{Q}_2 = 0$  и  $\cos \mathcal{Q}_2 = 1$  для любого комплексного показателя преломления  $m_2$ . Тогда, подставив  $m_2$  в (1) и затем преобразованное соотношение (1) в (3), получим

$$r = \frac{r_{12} + r_{23} \tau_{\text{тн}} \exp(-i\beta)}{1 + r_{12}r_{23} \tau_{\text{тн}} \exp(-i\beta)}, \quad (4)$$

где  $\tau_{\text{тн}} = \exp(-\alpha_2 h)$  характеризует пропускательную способность материала пленки в направлении распространения излучения на пути  $h$ ,  $\alpha_2 = 4\pi\kappa_2/\lambda$  — коэффициент поглощения материала пленки.

Из сравнения соотношений (3) и (4) следует, что при замене показателя преломления  $n_2$  на комплексный показатель преломления  $m_2$  в выражении (4) возник множитель  $\tau_{\text{тн}}$ , который характеризуют ослабление излучения за счет поглощения в пленке. Коэффициент  $\beta$ , характеризующий разность фаз двух соседних лучей, остался тем же, что и в (3). В связи с этим при падении излучения под углом  $\mathcal{Q}_1 = 0$  наличие или отсутствие поглощения излучения в пленке не влияет на положение максимумов и минимумов при интерференции. Однако в результате поглощения излучения в среде амплитуда осцилляций должна уменьшаться во времени.

При произвольных значениях  $\mathcal{Q}_1 > 0$  для численных расчетов использовались соотношения типа (3) как наиболее компактные, которые имеют ту же физическую интерпретацию, что и (4). Поскольку интенсивность пропорциональна квадрату амплитуды и любая плоская монохроматическая волна может быть представлена как совокупность двух плоских  $s$  и  $p$  волн, то эффективная полусферическая отражательная способность  $\rho_{\text{тн}}$  системы “оксидная пленка–металлическая подложка” в направлении падения излучения под углом  $\mathcal{Q}_1$  определялась на основании отдельно рассчитанных величин  $\rho_s$  и  $\rho_p$  по соотношениям вида  $\rho = |r|^2 = rr^*$ , где  $r^*$  — комплексно сопряженная величина. Тогда, при условии, что падающее

на систему излучение неполяризовано, на основании выражения (3) для длины волны излучения в вакууме  $\lambda$  искомая величина  $\rho_{\text{тн}}$  рассчитывается по формулам [1, 6]:

$$\begin{aligned}\rho_{\text{тн}}(\mathcal{A}_1) &= \{\rho_s(\mathcal{A}_1) + \rho_p(\mathcal{A}_1)\} / 2, \\ \rho_s &= \left| \frac{r_{12s} + r_{23s} \exp(-i\delta)}{1 + r_{12s} r_{23s} \exp(-i\delta)} \right|^2, \\ \rho_p &= \left| \frac{r_{12p} + r_{23p} \exp(-i\delta)}{1 + r_{12p} r_{23p} \exp(-i\delta)} \right|^2, \\ r_{12s} &= (m_1 \cos \mathcal{A}_1 - m_2 \cos \mathcal{A}_2) / (m_1 \cos \mathcal{A}_1 + m_2 \cos \mathcal{A}_2), \\ r_{23s} &= (m_2 \cos \mathcal{A}_2 - m_3 \cos \mathcal{A}_3) / (m_2 \cos \mathcal{A}_2 + m_3 \cos \mathcal{A}_3), \\ r_{12p} &= (m_2 \cos \mathcal{A}_1 - m_1 \cos \mathcal{A}_2) / (m_2 \cos \mathcal{A}_1 + m_1 \cos \mathcal{A}_2), \\ r_{23p} &= (m_3 \cos \mathcal{A}_2 - m_2 \cos \mathcal{A}_3) / (m_3 \cos \mathcal{A}_2 + m_2 \cos \mathcal{A}_3), \\ \delta &= 4\pi m_2 h \cos \mathcal{A}_2 / \lambda.\end{aligned}\tag{5}$$

Здесь  $\rho_s$  и  $\rho_p$  — отражательные способности системы “оксидная пленка — металл” для волн, параллельной и перпендикулярной плоскости падения излучения соответственно;  $h$  — толщина пленки;  $m_k = n_k - i\kappa_k$  — комплексный показатель преломления материала  $k$ -го слоя,  $n_k$  — показатель преломления  $k$ -го слоя,  $\kappa_k$  — показатель поглощения  $k$ -го слоя,  $k$  — индекс слоя, 1 — воздух, 2 — оксидная пленка, 3 — металл;  $r_{kj}$  — амплитудные коэффициенты отражения на границе  $k$ -й и  $j$ -й сред; индекс  $s$  означает волну, параллельную плоскости падения излучения, индекс  $p$  означает волну, перпендикулярную плоскости падения излучения; углы  $\mathcal{A}_1, \mathcal{A}_2, \mathcal{A}_3$  указаны на рис. 1 (здесь и далее индексы длины волны излучения в вакууме для краткости опущены).

В соответствии с законом Снелла  $m_1 \sin \mathcal{A}_1 = m_2 \sin \mathcal{A}_2 = m_3 \sin \mathcal{A}_3$ . Тогда:

$$\begin{aligned}\sin \mathcal{A}_2 &= n_1 \sin \mathcal{A}_1 / m_2, \quad \sin \mathcal{A}_3 = n_1 \sin \mathcal{A}_1 / m_3, \\ \cos \mathcal{A}_1 &= (1 - \sin^2 \mathcal{A}_1)^{1/2}, \quad \cos \mathcal{A}_2 = (1 - \sin^2 \mathcal{A}_2)^{1/2}, \quad \cos \mathcal{A}_3 = (1 - \sin^2 \mathcal{A}_3)^{1/2}.\end{aligned}\tag{6}$$

При  $\mathcal{A}_1 = 0$ ,  $\rho_s(\mathcal{A}_1 = 0) = \rho_p(\mathcal{A}_1 = 0)$ . Тогда, в соответствии с (4) и (5),

$$\rho_{\text{тн}} = \rho_s = \left| \frac{r_{12s} + r_{23s} \tau_{\text{тн}} \exp(-i\beta)}{1 + r_{12s} r_{23s} \tau_{\text{тн}} \exp(-i\beta)} \right|^2.\tag{7}$$

Из (7) следует, что при  $\mathcal{A}_1 = 0$  и указанных предположениях зависимость  $\rho_{\text{тн}}$  от  $h$  обладает определенной периодичностью, которую можно рассчитать с помощью простых соотношений. Так, с помощью формулы Эйлера,

$$\exp(-i\beta) = \cos \beta - i \sin \beta.\tag{8}$$

Как следует из равенства (8), при постоянстве оптических параметров  $m_k$  отражательная способность системы “оксидная пленка–металл” периодически

изменяется всякий раз, когда угол  $\beta$  увеличивается на  $2\pi$  из-за роста оксидной пленки. Тогда абсолютная величина прироста  $\Delta h$  толщины пленки за один период изменения  $h$  может быть определена на основании (8) из соотношения:

$$\Delta\beta_h = 2\pi = 4\pi n_2 \Delta h / \lambda. \quad (9)$$

Из (9) следует:

$$\Delta h = \lambda / (2n_2). \quad (10)$$

Важно отметить, что при постоянстве значений  $m_i$  для экспериментального определения времени прироста слоя толщиной  $\Delta h$  за один цикл не обязательно знать величину  $n_2$ . Для этого достаточно измерить интервал (например, между соседними минимумами или максимумами) зависимости  $\rho_{\text{тн}}$  от времени. Если же величина  $n_2$  известна, то толщина очередного слоя может быть оценена на основании (10).

Из равенства (8) также следует, что при постоянстве значений  $m_i$  отражательная способность  $\rho_{\text{тн}}(\mathcal{G}_1)$  системы также циклически меняется при увеличении волнового числа  $\nu = 1/\lambda$ . Тогда на основании (8) может быть оценена абсолютная величина разности  $\Delta\nu$  волновых чисел, характеризующих один цикл:

$$\begin{aligned} \Delta\beta_\nu &= 2\pi = 4\pi n_2 h \Delta\nu, \\ \Delta\nu &= 1 / (2n_2 h). \end{aligned} \quad (11)$$

Из (11) следует, что при увеличении  $\nu$  и постоянстве  $m_i$  и  $h$  величина  $\Delta\nu$  цикла остается неизменной. Причем если известно значение  $n_2$ , то в соответствии с (11) может быть оценена величина толщины  $h$  оксидной пленки.

На основании (1")

$$\Delta\beta_\xi = 2\pi = 4\pi n_2 \Delta\xi. \quad (12)$$

Тогда при постоянстве  $m_i$ , зная величину  $\Delta h$ , можно определить величину  $\Delta\nu$  из соотношения

$$\Delta\xi = 1 / (2n_2) = \nu \Delta h = h \Delta\nu, \quad (13)$$

где  $h$  и  $\nu$  постоянные величины.

### 1.2. Толщина пленки много больше длины волны падающего излучения

Поскольку пленка оптически однородна, эффектами рассеяния излучения можно пренебречь. Расчетная формула для эффективной отражательной способности  $\rho_{\text{тк}}$  системы "оксидная пленка–металлическая подложка" при длине волны падающего излучения  $\lambda$  была получена в пределах применимости формул Френеля и законов геометрической оптики тем же методом многократных отражений, что и в п. 1.1 (здесь и далее параметр заданного направления и длина волны  $\lambda$  для краткости опущены):

$$\rho_{\text{тк}} = \rho_{12} + \frac{\rho_{23} \tau_{\text{тк}}^2 (1 - \rho_{12})^2}{1 - \rho_{21} \rho_{23} \tau_{\text{тк}}^2}, \quad (14)$$

где  $\rho_{12}$  — отражательная способность на границе поверхности, разделяющей среды 1 и 2,  $\rho_{23}$  — отражательная способность на границе поверхности, разделяющей среды 2 и 3,  $\tau_{tk} = \exp(-\alpha_2 h)$  — пропускательная способность материала пленки в направлении распространения излучения на пути  $h$ . Остальные обозначения такие же, что в п. 1.1. При  $\kappa_2 = 0$  величина  $\tau_{tk} = 1$  и отражательная способность системы определяется по соотношению

$$\rho_{tk} = \rho_{12} + \frac{\rho_{23}(1 - \rho_{12})^2}{1 - \rho_{21}\rho_{23}}. \quad (15)$$

При  $\kappa_2 \rightarrow \infty$  величина  $\tau_{tk} \rightarrow 0$ , второе слагаемое в (13) стремится к нулю и  $\rho_{tk} \rightarrow \rho_{12}$ . Отражение системы полностью определяется отражательной способностью оксидной пленки.

При падении неполяризованного излучения из  $k$ -й среды в соседнюю  $j$ -ю среду в направлении нормали к разделяющей поверхности отражательная способность  $\rho_{kj}$  границы двух сред вычислялась в соответствии с формулами Френеля для амплитудных коэффициентов отражения (5):

$$\rho_{kj} = |r_{kj}|^2 = \left| \frac{m_j - m_k}{m_j + m_k} \right|^2 = r_{kj} r_{kj}^* = \frac{(n_j - n_k)^2 + (\kappa_j - \kappa_k)^2}{(n_j + n_k)^2 + (\kappa_j + \kappa_k)^2}. \quad (16)$$

Согласно принципу обратимости хода лучей,  $\rho_{kj} = \rho_{jk}$ .

При диффузном характере отражения поверхностей, разделяющих среды, для описания переноса излучения в системе целесообразно использовать систему из двух интегральных уравнений относительно искомым поверхностных плотностей эффективного излучения. Для данного случая эта система вырождается в элементарную систему алгебраических уравнений. Поскольку одна часть пучка параллельных лучей, падающих на пленку с поверхностной плотностью  $E_{in}$ , частично отражается ( $R_{12} E_{in}$ ), а остальная проходит в пленку, то необходимо выделить поток энергии, который излучается в окружающее пространство после первого отражения (здесь  $R_{12}$  означает диффузную отражательную способность при прохождении излучения из среды 1 в среду 2,  $R_{kj} = R_{jk}$ ). Одновременно часть потока  $(1 - R_{12}) E_{in}$  проходит сквозь поверхность и становится источником излучения внутри пленки. Обозначим верхнюю и нижнюю внутренние поверхности пленки индексами  $up$  и  $dn$  соответственно. Тогда для искомым поверхностных плотностей эффективного излучения  $E_{ef}^{up}$  и  $E_{ef}^{dn}$  можем записать систему из двух алгебраических уравнений (см., например, [9, 10]):

$$E_{ef}^{up} = (1 - R_{12}) E_{in} + R_{21} \tau_{tk} E_{ef}^{dn}, \quad (17)$$

$$E_{ef}^{dn} = R_{23} \tau_{tk} E_{ef}^{up}. \quad (18)$$

Решая совместно (17) и (18), получаем

$$E_{ef}^{dn} = \frac{R_{23} \tau_{tk} (1 - R_{12}) E_{in}}{1 - R_{21} R_{23} \tau_{tk}^2}.$$

Из теплового баланса следует, что суммарная поверхностная плотность  $E_{\text{ef}}^{\text{ref}}$  отраженного системой излучения определяется соотношением

$$E_{\text{ef}}^{\text{ref}} = E_{\text{in}} R_{12} + (1 - R_{21}) \tau_{\text{tk}} E_{\text{ef}}^{\text{dn}} = E_{\text{in}} R_{\text{tk}}^{\text{dif}}, \quad (19)$$

где суммарная отражательная способность системы

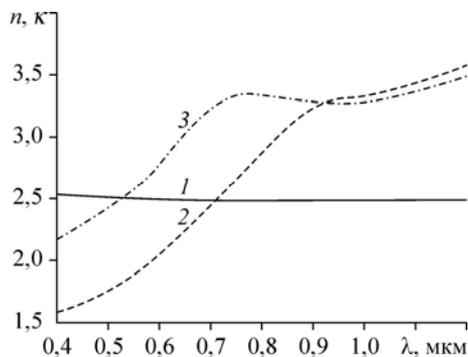
$$R_{\text{tk}}^{\text{dif}} = R_{12} + \frac{R_{23} \tau_{\text{tk}}^2 (1 - R_{12})^2}{1 - R_{21} R_{23} \tau_{\text{tk}}^2}. \quad (20)$$

Как известно, для параллельных пластин бесконечной протяженности формула (20) справедлива и при диффузном характере отражения. Однако использование интегральных уравнений позволяет определять отражательную способность системы “полупрозрачная пленка–металл” для пленок различной формы, шероховатости поверхности и при различных индикатрисах отражения и рассеяния, т. е. в случаях, в которых применение метода многократных отражений затруднительно или невозможно.

## 2. Результаты компьютерного моделирования

При падении излучения от точечного источника по направлению, задаваемому углом  $\vartheta_1 > 0$ , система многократно отражает это излучение внутри пленки, причем место выхода отраженного излучения из пленки определяется порядковым номером отражения. В связи с этим отраженное излучение, вообще говоря, не локализовано в месте падения излучения. Вместе с тем, при  $\vartheta_1 = \vartheta_2 = \vartheta_3 = 0$  (излучение падает по нормали к поверхности) все отражения, выходящие из системы, локализируются в месте падения излучения, и отношение суммарного излучения, отраженного системой, к падающему излучению представляет собой эффективную направленно-полусферическую отражательную способность. Этот случай численно исследовался наиболее подробно.

Оценка значений комплексных показателей рутила (диоксида титана) и титана проводилась на основании справочных данных [11]. При проведении расчетов для пленки рутила полагалось, что в интервале длин волн от 0,4 до 1,2 мкм показатель поглощения  $\kappa_2$  постоянен по спектру и находится в пределах



0,01–0,1. Спектральные зависимости  $n_2$  для рутила и  $n_3$ ,  $\kappa_3$  для титана в виде графиков приведены на рис. 2. Эти данные использовались в качестве основных при компьютерном моделировании вне зависимости от уровня температур.

Рис. 2. Зависимости  $n_2$  (1) от  $\lambda$  для диоксида титана и  $n_3$  (2),  $\kappa_3$  (3) для титана.

**2.1. Зависимость  $\rho_{\text{тн}}$  системы “пленка диоксида титана–титан” от толщины  $h$  при  $\lambda = 0,65$  мкм и различных значениях показателя поглощения  $\kappa_2$ : толщина пленки  $h$  соизмерима с  $\lambda$**

Расчеты для эффективной отражательной способности  $\rho_{\text{тн}}$  системы проводились при  $\lambda = 0,65$  мкм,  $n_2 = 2,5$ ,  $m_3 = 2,3 - i3,0$  и различных значениях  $\kappa_2$  и  $h$  по соотношениям (5)–(7). При падении излучения в направлении нормали результаты представлены на рис. 3 и 4.

Как следовало ожидать, расстояние между соседними максимумами (минимумами) в соответствии с (10) равно  $\lambda/(2n_2)$ , т. е. значение  $\Delta h$ , при прочих равных условиях, зависит только от длины волны падающего излучения и показателя преломления оксидной пленки. Величина показателя преломления  $\kappa_2$  не влияет на положение максимумов (минимумов). Однако при  $\kappa_2 > 0,1$  осцилляции быстро затухают.

Из соотношения (7) следует, что с увеличением  $h$  амплитуда колебаний  $\rho_{\text{тн}}$  уменьшается из-за увеличения  $\tau_{\text{тн}}$ . Поэтому, как следует из рис. 3, первый минимум и максимум  $\rho_{\text{тн}}$  являются глобальными точками экстремума.

Длина цикла  $\Delta v$  может быть определена из соотношения (13), если известны величины  $\Delta h$ , волновое число  $v$ , при котором определялось значение  $\Delta h$ , и толщина  $h$  пленки.

Для анализа цикличности оптических свойств системы удобно использовать формулу для  $\delta$  из (5), в которой комплексная часть записана в виде  $m_2 \cos \vartheta_2 = a_2 - ib_2$ , а  $\eta_0 = 4\pi h/\lambda$ . Тогда

$$\delta = 4\pi m_2 h \cos \vartheta_2 / \lambda = \eta_0 (a - ib), \quad (21)$$

где  $a = \{g(p+1)/2\}^{1/2}$ ,  $b = \{g(p-1)/2\}^{1/2}$ ,  $p = [1 + 4(n_2 \kappa_2 / g)^2]^{1/2}$ ,

$$g = n_2^2 - \kappa_2^2 - (n_1 \sin \vartheta_1)^2.$$

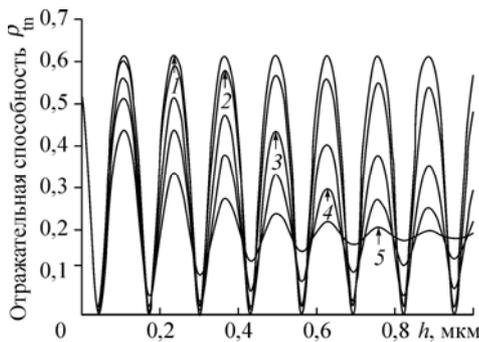


Рис. 3. Зависимость эффективной отражательной способности  $\rho_{\text{тн}}$  системы “пленка диоксида титана–титан” в направлении нормали от толщины пленки  $h$  при  $\lambda = 0,65$  мкм,  $n_2 = 2,5$ ,  $m_3 = 2,3 - i3,0$  и различных значениях показателя поглощения  $\kappa_2$ :  $\kappa_2 = 0$  (1), 0,01 (2), 0,05 (3), 0,1 (4), 0,2 (5).

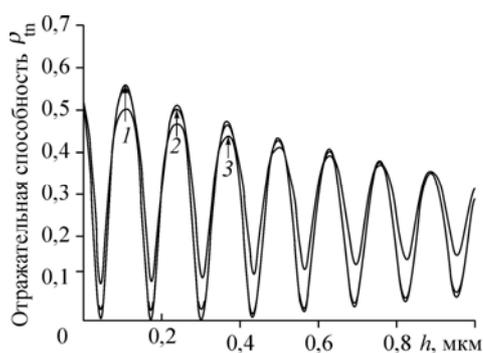


Рис. 4. Зависимость эффективной отражательной способности  $\rho_{\text{тн}}$  системы “пленка диоксида титана–титан” от толщины пленки  $h$  при  $\lambda = 0,65$  мкм,  $n_2 = 2,5$ ,  $\kappa_2 = 0,05$ ,  $m_3 = 2,3 - i3,0$  и различных значениях угла  $\vartheta_1$ :  $\vartheta_1 = 0$  (1),  $\pi/6$  (2),  $\pi/3$  (3).

Тогда

$$\exp(-i\delta) = \exp(-\eta_0 b) \exp(-i\eta_0 a) = \exp(-\eta_0 b) \{ \cos(\eta_0 a) - i \sin(\eta_0 a) \} \quad (22)$$

и, по аналогии с (4), параметр  $b$  характеризует пропускательную способность пленки, а параметр  $a$  — цикличность оптических свойств системы при увеличении  $h$  в процессе окисления. Так же, как при выводе (10),

$$\begin{aligned} \Delta\delta_h &= 2\pi = 4\pi a \Delta h / \lambda, \\ \Delta h &= \lambda / (2a). \end{aligned} \quad (23)$$

В равенстве (23) параметр  $a$  зависит от  $n_1, n_2, \kappa_2$  и угла  $\mathcal{A}_1$ . При увеличении угла  $\mathcal{A}_1$  и постоянстве прочих условий параметр  $a$  уменьшается, а параметр  $b$  увеличивается. Соответственно увеличивается величина  $\Delta h$  (длина волны осцилляций по  $h$ ) и пропускательная способность пленки (из-за некоторого увеличения оптического пути). Это подтверждают данные расчета, представленные на рис. 4 в виде графиков.

**2.2. Зависимость  $\rho_{\text{тк}}$  системы “пленка диоксида титана–титан” от толщины  $h$  при  $\lambda = 0,65$  мкм и различных значениях показателя поглощения  $\kappa_2$  толщина пленки  $h$  много больше  $\lambda$**

Расчеты проводились по соотношениям п. 1.2 при  $\lambda = 0,65$  мкм,  $n_2 = 2,5$ ,  $m_3 = 2,3 - i3,0$  и различных значениях  $\kappa_2$  и  $h$ . Данные в виде графиков представлены на рис. 5, 6.

Как следует из рис. 5 и выражения (14), при  $\kappa_2 > 0,05$  и  $h > 3$  мкм отражательная способность системы определяется практически отражательной способностью  $\rho_{12}$  оксидной пленки. Причем при увеличении  $\kappa_2$  величина  $\rho_{12}$  также увеличивается. Таким образом, при  $h \geq 3$  мкм в интервале изменения  $\kappa_2 = 0,01 - 0,06$  зависимость  $\rho_{12}$  имеет минимум.

Как следует из рис. 6 и выражения (15), наибольшим отражательным эффектом система обладает при  $\kappa_2 = 0$ . При  $\kappa_2 \geq 0,05$  и  $h \geq 3$  мкм многократные отражения

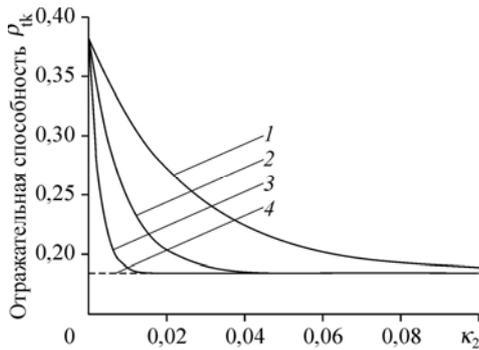


Рис. 5. Зависимость эффективной отражательной способности  $\rho_{\text{тк}}$  системы “пленка диоксида титана–титан” в направлении нормали от показателя поглощения  $\kappa_2$  при  $\lambda = 0,65$  мкм,  $n_2 = 2,5$ ,  $m_3 = 2,3 - i3,0$  и различных значениях толщины пленки  $h$ :  $h = 1$  (1), 3 (2), 10 (3),  $\rho_{12}$  (4) мкм.

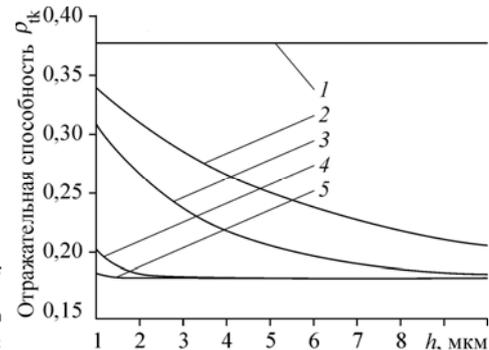
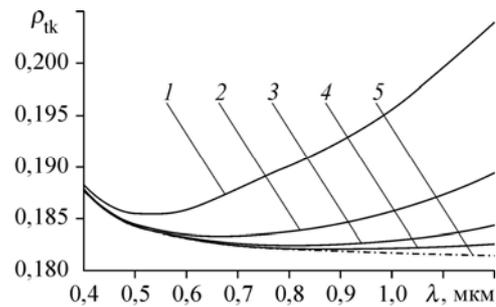


Рис. 6. Зависимость эффективной отражательной способности  $\rho_{\text{тк}}$  системы “пленка диоксида титана–титан” в направлении нормали от толщины пленки  $h$  при  $\lambda = 0,65$  мкм,  $n_2 = 2,5$ ,  $m_3 = 2,3 - i3,0$  и различных значениях показателя поглощения  $\kappa_2$ :  $\kappa_2 = 0$  (1), 0,005 (2), 0,01 (3), 0,05 (4), 0,1 (5).

Рис. 7. Зависимость эффективной отражательной способности  $\rho_{\text{тк}}$  системы “пленка диоксида титана–титан” в направлении нормали от  $\lambda$  при  $\kappa_2 = 0,01$  и различных значениях  $h$ :

$h = 10$  (1), 15 (2), 20 (3), 25 (4),  $\rho_{\text{тк}} = \rho_{12}$  (5) мкм.

в пленке практически полностью поглощаются, и отражательная способность системы определяется отражательной способностью  $\rho_{12}$  пленки.



### 2.3. Зависимость $\rho_{\text{тк}}$ системы “пленка диоксида титана–титан” от $\lambda$ при $\kappa_2 = \text{const}$ и различных значениях $h$ : толщина пленки $h$ много больше $\lambda$

Результаты расчета представлены на рис. 7. Видно, что при увеличении толщины пленки спектральная зависимость  $\rho_{\text{тк}}$  стремится к спектральной зависимости  $\rho_{12}$ .

#### Заключение

Проведено компьютерное моделирование оптических свойств системы “оксидная пленка–металл” в процессе окисления в воздушной среде в зависимости от толщины пленки и длины волны падающего излучения.

**Оксидные пленки, толщина которых соизмерима с длиной волны падающего излучения.** Для этого типа пленок образование новых слоев может быть идентифицировано по определению расстояния между максимумами (минимумами) зависимости полусферической отражательной способности  $\rho_{\text{тн}}$  системы в направлении падения излучения от толщины пленки  $h$ . При постоянной толщине пленки и независимости оптических свойств системы от  $\lambda$  имеет место цикличность изменения  $\rho_{\text{тн}}$  от волнового числа  $\nu = 1/\lambda$ . Циклическая зависимость  $\rho_{\text{тн}}$  от времени позволяет получать информацию об оптических свойствах системы и, в частности, об оптических свойствах оксидной пленки, не прибегая к контакту с объектом. Приведены соответствующие расчетные формулы, которым дана физическая интерпретация. Выделен параметр, который характеризует периодичность отражательных свойств системы (и длину волны осцилляций по  $h$ ), и параметр, который характеризует пропускательную способность пленки в процессе ее роста. Показано, что при падении излучения по нормали к поверхности и известной толщине пленки по экспериментально измеренной длине  $\Delta h$  цикла может быть оценена величина показателя преломления пленки, а при известной величине показателя преломления — толщина пленки. Приведенные расчетные соотношения позволяют определить параметры пленки, при которых осцилляции  $\rho_{\text{тн}}$  практически полностью затухают. Метод многократных отражений, используемый при выводе расчетной формулы для  $\rho_{\text{тн}}$ , позволяет оценить величину  $\rho_{\text{тн}}$  при учете любого количества отражений. Это важно в тех случаях, когда размеры площадки визуирования позволяют зарегистрировать только несколько отражений.

**Оксидные пленки, толщина которых много больше длины волны падающего излучения.** Для этого типа пленок использовались соотношения, полученные

также методом многократных отражений, но в пределах применения геометрической оптики. Наряду с этим показано, что для таких пленок данная задача в более общей постановке может быть исследована с помощью интегральных уравнений переноса тепла излучением. Модельный вычислительный эксперимент проведен для металла типа нагретого титана, окисляющегося в воздушной среде. Полученные численные результаты качественно согласуются с экспериментальными данными, известными из литературных источников [2, 7, 8].

### Список литературы

1. Борн М., Вольф Э. Основы оптики. М.: Наука, 1970. 855 с.
2. Zhang Z.M. Nano/microscale heat transfer. N.Y.: McGraw-Hill, 2007. 479 p.
3. Macleod H.A. Thin film optical filters. 3rd ed. Bristol: Institute of Physics, 2001. 641 p.
4. Modest M.F. Radiative heat transfer. 2nd ed. N.Y.: Academic Press, 2003. 822 p.
5. Свет Д.Я. Оптические методы измерения истинных температур. М.: Наука, 1982. 295 с.
6. Iuchi T., Furukawa T., Wada S. Emissivity modeling of metals during the growth of oxide film and comparison of the model with experimental results // Applied Optics. 2003. Vol. 42, No. 13. P. 2317–2326.
7. Аверков Е.И. Свойства теплового излучения титана и его промышленных сплавов // Сиб. физ.-тех. журнал. 1991. Вып. 1. С. 3–16.
8. Рубцов Н.А., Аверков Е.И., Емельянов А.А. Свойства теплового излучения материалов в конденсированном состоянии. Новосибирск: Институт теплофизики СО РАН, 1988. 348 с.
9. Рубцов Н.А. Теплообмен излучением в сплошных средах. Новосибирск: Наука, Сиб. отд-ние, 1984. 276 с.
10. Русин С.П., Пелецкий В.Э. Тепловое излучение полостей. М.: Энергоатомиздат, 1987. 152 с.
11. Palik E.D. Handbook of Optical Constants of Solids. N.Y. Academic Press, 1998. 999 с.

*Статья поступила в редакцию 27 июня 2011 г.*