

УДК 535.87

## РАСЧЕТ КОЭФФИЦИЕНТА ОТРАЖЕНИЯ МЕТАЛЛ-ДИЭЛЕКТРИЧЕСКИХ СТРУКТУР ПРИ НАРУШЕННОМ ПОЛНОМ ВНУТРЕННЕМ ОТРАЖЕНИИ

Н. Д. Голдина

*Институт лазерной физики СО РАН,  
630090, г. Новосибирск, просп. Академика Лаврентьева, 13/3  
E-mail: ngold@laser.nsc.ru*

С применением модели проводящей поверхности для тонкого поглощающего слоя получены аналитические формулы для расчета коэффициента отражения тонкопленочной структуры металл — диэлектрический слой при углах падения света, больших критического угла полного внутреннего отражения. Показано, что асимметричная интерференционная картина спектральной зависимости коэффициента отражения обладает большой чувствительностью к изменениям показателя преломления внешней среды.

*Ключевые слова:* тонкий металлический слой, полное внутреннее отражение, многослойное покрытие, биосенсоры.

**Введение.** Миниатюрные тонкослойные сенсорные структуры с металлической пленкой обладают высокой чувствительностью к изменениям показателей преломления и поглощения анализируемых жидких и газообразных сред [1–5]. В отраженном свете при углах падения, больших критического, появляется нарушенное полное внутреннее отражение (НПВО) с резонансной зависимостью коэффициента отражения  $R$  от угла падения или длины волны. Интересно проанализировать трансформацию кривых  $R$  для различных комбинаций тонкой металлической пленки с диэлектрическими слоями. При добавлении диэлектрических слоев резонансные эффекты могут быть усилены.

В [5] исследованы угловые характеристики коэффициента отражения от тонкослойной структуры с одной металлической пленкой при НПВО. Для расчета использовалась модель комплексной поверхностной проводимости для тонкого поглощающего слоя.

Цель данной работы — провести анализ спектральных характеристик металл-диэлектрических структур в условиях НПВО и показать, что спектральные измерения имеют определенные преимущества перед угловыми измерениями.

**Двуслойная структура.** С использованием модели поверхностной проводимости (МПП) для тонкой металлической пленки [5] рассмотрим простую двуслойную структуру (рис. 1) металлическая пленка — диэлектрический слой. Исходная среда, из которой

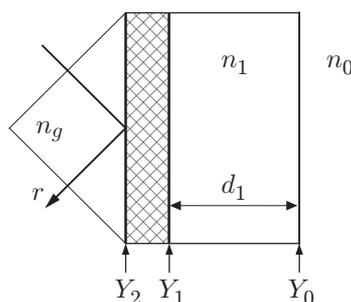


Рис. 1. Схема двуслойной металл-диэлектрической структуры

падает свет, имеет показатель преломления  $n_g > n_0$ , где  $n_0$  — показатель преломления внешней среды. Угол падения  $\theta_g$  превышает критический угол  $\theta_{кр} = \arcsin(n_g \sin \theta_g / n_0)$ . Показатель преломления диэлектрического слоя равен  $n_1 > n_0$ . Металлический слой характеризуется двумя параметрами: активной  $\xi' = 2nk\gamma$  и реактивной  $\xi'' = (n^2 - k^2)\gamma$  составляющими комплексной поверхностной проводимости, где  $\gamma = 2\pi d/\lambda$ .

Методом адмиттансов рассмотрим расчет амплитудного коэффициента отражения для  $p$ -поляризации падающей плоской волны. Обозначим входные комплексные проводимости (нормированные оптические адмиттансы) в плоскости границ слоев  $Y_{0p}$ ,  $Y_{1p}$ ,  $Y_{2p}$ . На выходной границе происходит полное внутреннее отражение (ПВО) и угол  $\theta_0$  — чисто мнимый:  $\cos \theta_0 = -i\sqrt{(n_g \sin \theta_g / n_0)^2 - 1} = -iM$ . Выбор знака обусловлен тем, что в выходной среде распространяется неоднородная волна с экспоненциально затухающей амплитудой. Адмиттанс  $Y_{0p} = n_0 / \cos \theta_0 = in_0 / M$  является чисто мнимым и трансформируется диэлектрическим слоем в чисто мнимый адмиттанс  $Y_{1p}$  по следующей формуле:

$$Y_{1p} = \eta_{1p} \frac{Y_{0p} + i\eta_{1p} \operatorname{tg} \varphi}{\eta_{1p} + iY_{0p} \operatorname{tg} \varphi} = i\eta_{1p} \frac{1 + B \operatorname{tg} \varphi}{B - \operatorname{tg} \varphi}, \quad (1)$$

где  $\eta_{1p} = n_1 / \cos \theta_1$  — эффективный показатель преломления;  $\varphi = 2\pi d_1 n_1 \cos \theta_1 / \lambda$  — фазовая толщина диэлектрического слоя;  $B = \eta_{1p} M / n_0$  — действительное число.

Адмиттанс  $Y_{2p}$  получим суммированием входной проводимости  $Y_{1p}$  и комплексной поверхностной проводимости  $\xi$ :  $Y_{2p} = \xi' + i(\xi'' + Y_{1p})$ . В результате амплитудный коэффициент отражения от всей структуры принимает вид

$$r_p = \frac{\eta_{gp} - Y_{2p}}{\eta_{gp} + Y_{2p}} = \frac{(\eta_{gp} - \xi') - i(Y_{1p} + \xi'')}{(\eta_{gp} + \xi') + i(Y_{1p} + \xi'')}, \quad (2)$$

где  $\eta_{gp} = n_g / \cos \theta_g$ .

Подобным образом можно записать формулы для расчета  $Y_s$  и  $r_s$ , изменив величины  $\eta_{ip}$  к виду  $\eta_{is} = n_i \cos \theta_i$ .

**Спектральная зависимость коэффициентов отражения.** В формуле (2) от длины волны зависят фазовая толщина  $\varphi$  и параметры  $\xi'$  и  $\xi''$ , в которые входит  $\gamma$ . Для рассматриваемой задачи пренебрежем дисперсией показателей преломления диэлектрических сред. Дисперсию оптических констант  $n$ ,  $k$  для металлической пленки также не будем учитывать. Это приближение справедливо для небольшого спектрального диапазона, в котором обычно работают сенсорные устройства. В данной работе рассмотрен более широкий участок спектра для того, чтобы оценить влияние диэлектрических слоев.

Адмиттанс  $Y_{1p}$  согласно (1) имеет периодическую зависимость при изменении длины волны или толщины слоя  $d_1$ . Диэлектрический слой является фазовым регулятором, и изменением толщины  $d_1$  можно сдвигать кривую  $R(\lambda)$  по спектру для настройки на  $\lambda_0$ . Комплексный адмиттанс  $Y_{2p}$  имеет реальную часть  $\xi'$  и мнимую часть  $\xi'' + Y_{1p}$ . Если  $\xi''$  — отрицательное число, то при определенной длине волны  $\xi'' + Y_{1p} = 0$  и коэффициент отражения имеет минимальное значение  $r_p = (\eta_{gp} - \xi') / (\eta_{gp} + \xi')$ . При выполнении условия согласования ( $\eta_{gp} = \xi'$ ) можно получить  $R_p = |r_p|^2 = 0$ . Крутизна спада  $R(\lambda)$  к минимуму растет с увеличением отрицательной величины  $\xi''$ , зависящей от выбора  $n$  и  $k$  материала поглощающей пленки.

Подобно можно рассмотреть и  $s$ -поляризацию.

На рис. 2 приведен расчет  $R_s(\lambda)$  и  $R_p(\lambda)$  для двуслойной структуры в рамках МПП с использованием формул (1) и (2). Для расчета взяты следующие значения:  $n_g = 1,46$ ;  $n_0 = 1,0$ ;  $n_1 = 2,3$ ;  $d_1 = 2,05$ ;  $\theta_g = 45^\circ$ . Толщина слоя  $d_1 = 2,05$  (в долях  $\lambda_0/4$  для наклонного падения,  $\lambda_0 = 650$  нм) выбрана такой, чтобы минимум  $R_p$  находился при  $\lambda = 632$  нм.

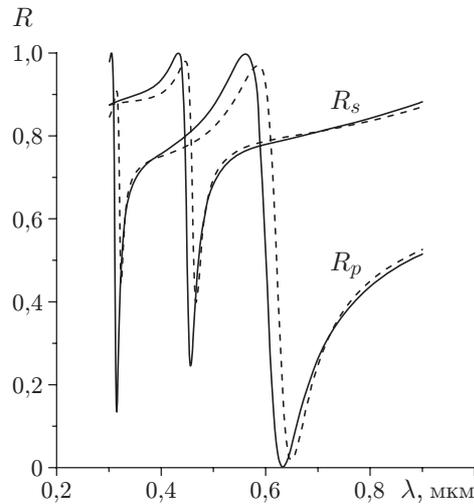


Рис. 2. Сравнение  $R_s(\lambda)$  и  $R_p(\lambda)$ , рассчитанных по моделям МПП и МОС для двуслойной структуры G/Al/H/A

Параметры пленки алюминия в модели однородного слоя (МОС):  $d = 12$  нм,  $n = 1,3$ ,  $k = 7,11$  для  $\lambda_0 = 650$  нм, как в работе [5]. В МПП им соответствуют значения параметров  $\xi' = 2,14$ ,  $\xi'' = -5,67$ . Расчет проводится для спектрального диапазона 300–900 нм, в котором  $n$  и  $k$  меняют свои значения:  $n = 0,25-2,0$ ,  $k = 3,2-7,5$  [6]. Здесь это не принимается во внимание, так как целью является оценка влияния диэлектрического слоя. Учет дисперсии  $n$  и  $k$  приведет к более сложным кривым. Согласно формуле (1) мнимая часть адмиттанса  $Y_{1p}$  стремится к бесконечности и меняет знак при  $\operatorname{tg} \varphi = B$ . На такой длине волны  $R_p$  имеет максимум. Когда  $\operatorname{Im} Y_{1p} = |\xi''|$ , достигается минимальное значение  $R_p$ . При этом условие согласования близко к выполнению ( $\eta_{gp} = 2,04$ ,  $\xi' = 2,14$ ) и минимум  $R_p$  равен 0,06 %. На рис. 2 кривые  $R_p(\lambda)$  и  $R_s(\lambda)$  в рамках МПП показаны сплошными кривыми.

Для сравнения на рисунке приведен точный расчет той же структуры, когда для металлической пленки используется МОС (штриховые кривые). Видно небольшое смещение обеих кривых вправо на величину  $\sim d/\lambda$ . Отсюда можно сделать вывод, что формулы (1) и (2), полученные с применением МПП, могут быть использованы для оценки спектральных характеристик  $R_s$  и  $R_p$  двуслойной структуры.

По сравнению с однослойной структурой (призма — металлический слой — выходная среда) в двуслойной структуре определяющую роль играет спектральная зависимость мнимой части адмиттанса  $Y_{1p}$ . Это приводит к появлению интерференционной зависимости  $R(\lambda)$ . Асимметрия интерференционной картины зависит от параметра  $\xi''$ .

На рис. 3 показан расчет  $R_s(\lambda)$  и  $R_p(\lambda)$  для однослойного варианта показан (штриховые кривые) и для сравнения приведены те же кривые для структуры из двух слоев (сплошные кривые). Расчет сделан в рамках МОС.

**Сенсорный спектральный вариант.** В [4] предложен тип сенсора с двумя угловыми минимумами в зависимости  $R(\theta)$ , из которых один может быть опорным при проведении измерений. Двуслойная структура в [4] состоит из пленки серебра и диэлектрического слоя, помещенного между призмой и слоем серебра.

В данной работе предлагается четырехслойная структура, состоящая из двуслойной структуры, описанной выше, и дополнительной пары слоев НЛ между призмой и металлическим слоем с показателями преломления  $n_H = 2,3$  и  $n_L = 1,5$ : G/H<sub>4</sub>/L<sub>3</sub>/Al<sub>2</sub>/H<sub>1</sub>/A. Толщины диэлектрических слоев:  $d_1 = 2,05$ ,  $d_3 = 1,87$  и  $d_4 = 1,00$  (указаны в долях  $\lambda_0/4$

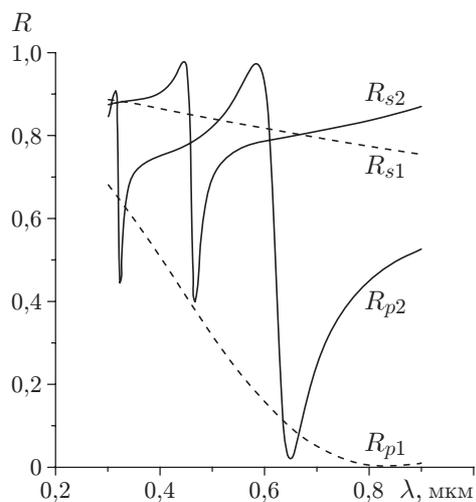


Рис. 3. Зависимости  $R_s(\lambda)$  и  $R_p(\lambda)$  для однослойной G/Al/A и двухслойной G/Al/H/A структур. Угол падения  $\theta_g = 45^\circ$

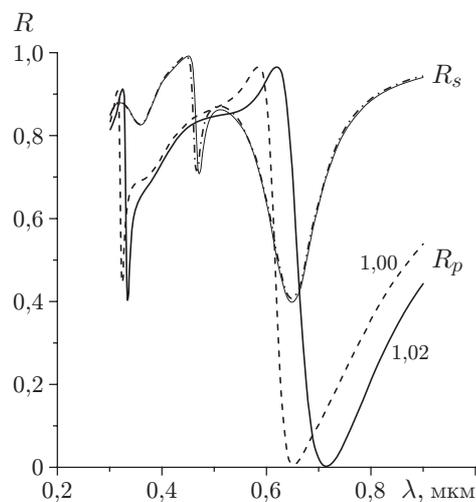


Рис. 4. Сдвиг  $R_p(\lambda)$  при изменении показателя преломления внешней среды в четырехслойной структуре ( $n_g = 1,46$ ,  $n_H = 2,3$ ,  $n_L = 1,5$ ,  $n_a = 1,00$  и  $n_a = 1,02$ ). Опорный минимум  $R_s(\lambda)$  не имеет сдвига

толщины для соответствующего угла падения). Толщина Al-слоя 12 нм; G — кварцевая призма; A — внешняя среда.

При демонстрации сенсорной чувствительности к изменению показателя преломления внешней среды на рис. 4 приведены зависимости  $R_s(\lambda)$  и  $R_p(\lambda)$  для  $n_a = 1,00$  и  $n_a = 1,02$ . Два добавочных слоя трансформируют кривую  $R_s(\lambda)$  таким образом, что минимумы  $R_s$  и  $R_p$  оказываются на одной длине волны. При небольшом изменении  $n_0$  кривая  $R_s(\lambda)$  практически не меняется, а кривая  $R_p(\lambda)$  испытывает существенный сдвиг (на 62 нм). Чувствительность изменяется с углом падения. Чем ближе угол  $\theta_g$  к  $\theta_{кр}$ , тем больше сдвиг  $R_p(\lambda)$  при изменении  $n_0$ .

**Многослойная структура.** Если между призмой и поглощающей пленкой разместить многослойное покрытие с высоким коэффициентом отражения, то всю структуру можно рассматривать как добротный интерферометр. Базой интерферометра является диэлектрический слой между металлической пленкой и выходной средой в двухслойной структуре. Одним из зеркал является граница с ПВО, а многослойное покрытие слева — вторым зеркалом интерферометра. Когда толщина базы соответствует резонансному условию, в отраженном свете получается резкий провал. На рис. 5 приведены спектральные зависимости  $R_s$  и  $R_p$  для 9-слойной структуры: G/H/L/H/L/H/L/H/Al/H/A. Все диэлектрические слои имеют оптическую толщину  $\lambda_0/4$  (при  $\lambda_0 = 650$  нм) для угла падения  $\theta_g = 45^\circ$ . Толщина Al-слоя 12 нм. Коэффициент отражения многослойного покрытия для s-поляризации выше, чем для p-поляризации. Двухслойная структура (штриховая кривая) настроена таким образом, что  $R_s(\lambda)$  имеет максимальный коэффициент отражения при длине волны  $\lambda_0$ . При добавлении многослойного покрытия (7 слоев) в отраженном свете для  $R_s$  получается узкая полоса поглощения шириной 5 нм. При изменении показателя преломления внешней среды с 1,00 до 1,02 происходит смещение узкого провала  $R_s$  на 7,5 нм, что на порядок меньше, чем в четырехслойной структуре (см. рис. 4).

Подобные структуры исследовались в [1, 2] в целях увеличения флуоресценции в поглощающей внешней среде и обнаружения поверхностных молекулярных слоев.

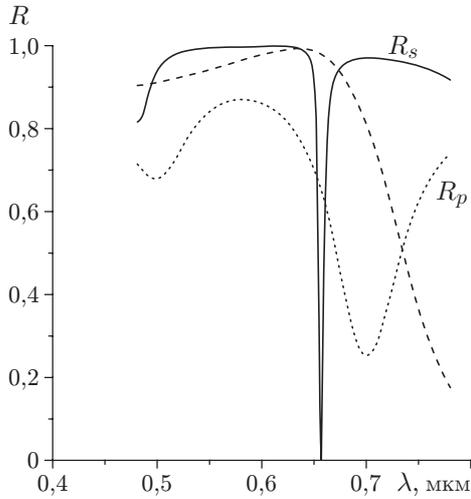


Рис. 5. Зависимости  $R_s(\lambda)$  (сплошная кривая) и  $R_p(\lambda)$  (пунктирная кривая) для интерференционной многослойной структуры G/H/L/H/L/H/L/H/Al/H/A. Штриховой кривой показана двухслойная структура G/Al/H/A

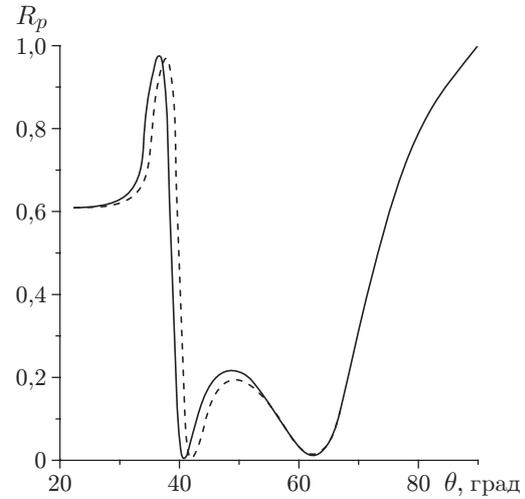


Рис. 6. Угловая зависимость  $R_p$  в трехслойной структуре G/L<sub>3</sub>/Al/L<sub>1</sub>/A, где  $n_g = 1,785$ ,  $n_L = 1,5$ ,  $n_a = 1,00$  (сплошная кривая) и  $n_a = 1,03$  (штриховая кривая)

**Угловой вариант для сенсора.** Как было отмечено в [4], при угловых сенсорных измерениях для регистрации смещения кривой  $R_p(\theta)$  удобно использовать дополнительный опорный минимум, который не смещается при изменении показателя преломления внешней среды. Рассмотрим трехслойную структуру G/L<sub>3</sub>/Al/L<sub>1</sub>/A, в которой тонкий металлический слой Al ( $d_2 = 12$  нм) заключен между двумя диэлектрическими слоями и закрыт от влияния внешней среды. Толщины диэлектрических слоев  $d_1 = 0,5$  и  $d_3 = 1,5$  (в долях  $\lambda_0/4$ , при  $\lambda_0 = 650$  нм) подобраны так, что в зависимости  $R_p(\theta)$  получается два минимума, один из которых не смещается при изменении показателя преломления внешней среды. Первый узкий минимум  $R_p(\theta)$ , как видно из рис. 6, сдвигается на угол  $1,2^\circ$  при небольшом изменении  $n_a = 1,00$ – $1,03$ . Величина сдвига зависит от соотношения  $n_g/n_a$  и увеличивается при повышении  $n_g$ . Возможны и другие варианты подбора диэлектрических слоев.

**Заключение.** В целях нахождения оптимальных вариантов сенсорных систем рассмотрены различные металл-диэлектрические структуры при падении света под углом  $\theta > \theta_{кр}$ .

Двухслойная структура металлическая пленка — диэлектрический слой в рамках МПП может рассматриваться как интерферометр, одним из зеркал которого является граница с ПВО, а вторым — металлический слой с комплексной проводимостью  $\xi$ .

Из формул, полученных в данной работе, следует, что коэффициент отражения  $R$  структуры имеет периодическую зависимость при изменении длины волны. Резкий контрастный переход между экстремумами в асимметричной интерференционной картине представляет интерес для измерений малых изменений показателя преломления внешней среды. В биосенсорах обычно используется минимум  $R$ , который приближается к нулю при выполнении условия согласования  $\xi' = \eta_g$ .

Добавление пары слоев слева от металлической пленки позволяет получить минимум для  $R_s(\lambda)$ , который не изменяет своего положения при изменении показателя преломления внешней среды. Этот минимум может служить в качестве опорного при измерении

сдвига  $R_p(\lambda)$ .

При размещении слева от металлической пленки многослойного покрытия с высоким коэффициентом отражения  $s$ -поляризованного света для избранной резонансной длины волны в зависимости  $R_s(\lambda)$  наблюдается узкий провал, который также можно использовать как репер в биосенсорном анализаторе [2].

Представляется интересной экспериментальная проверка полученных численных результатов. Рассмотренные структуры удобно использовать в волоконных сенсорах, сердцевина которых заменяет призму.

### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. **Ye J. Y., Ishikawa M.** Enhancing fluorescence detection with a photonic crystal structure in a total-internal-reflection configuration // Opt. Lett. 2008. **33**, N 15. P. 1729–1731.
2. **Guo Y., Divin C., Muc A. et al.** Sensitive molecular binding assay using a photonic crystal structure in total internal reflection // Opt. Express. 2008. **16**, N 16. P. 11741–11749.
3. **Harrick N. J., Turner A. F.** A thin film optical cavity to induce absorption or thermal emission // Appl. Opt. 1970. **9**, N 9. P. 2111–2114.
4. **Курлов С. С., Поперенко Л. В., Лебедева Т. С., Шпилевой П. Б.** Исследование возможностей применения двойного поверхностного резонанса в ППР-сенсорах // Тр. VIII Междунар. конф. «Прикладная оптика». С.-Пб. 2008. Т. 2. С. 237–241.
5. **Голдина Н. Д.** Нарушенное полное внутреннее отражение от тонкослойных структур с металлической пленкой // Опт. и спектр. 2009. **106**, № 5. С. 829–833.
6. **American Institute of Physics Handbook** / Ed. D. Gray. N. Y.: McGraw-Hill, 1972. P. 6–124.

*Поступила в редакцию 15 июня 2009 г.*

---