

УДК 09.4.
EDN: OUTBEG

PACS: 42.79.-e

Структура и оптические свойства тонкоплёночных многослойных зеркальных покрытий на основе пары Ta₂O₅/SiO₂, полученных методом ионного распыления

Д. Б. Пушкин, А. С. Скрябин, В. Г. Жупанов, А. Г. Турьянский, В. М. Сенков

Применение оптических покрытий на основе многослойных диэлектрических зеркал в настоящий момент представляет существенный интерес для создания радиационно-стойкой зеркальной оптики. Апробировано применение метода распыления ионным пучком для создания ИК-зеркала на основе пары Ta₂O₅/SiO₂, нанесенного на подложку из плавленого кварца. Полученные образцы были изучены с помощью спектrophотометрии в видимом и ИК-диапазонах, рентгеновской рефлектометрии и дифракции. Примененный метод позволил получать аморфные слои Ta₂O₅ и SiO₂. Для достигнутых толщин и плотностей покрытий коэффициент отражения в ближнем ИК превышал 99,9 %. Показано, что использованная комплексная методика может быть полезна не только для исследования структуры и состава подобных покрытий, но и для индикации отклонения формы образцов, например, вследствие растягивающих механических напряжений.

Ключевые слова: диэлектрические тонкие плёнки; ионное распыление; просветляющие и зеркальные покрытия.

DOI: 10.51368/1996-0948-2024-6-68-73

Введение

Диэлектрические зеркала и просветляющие элементы с малыми потерями исполь-

зуются в различных областях, включая мощную лазерную технику, спутниковую связь и прочих отраслях, предъявляющих повышенные требования к качеству оптики [1]. Интерференционные диэлектрические тонкоплёночные покрытия [2] являются наиболее ответственными узлами, чье качество во многом и определяет ресурс и производительность всей системы.

Среди таких систем в настоящее время активно рассматриваются пары HfO₂/SiO₂, ZrO₂/SiO₂ и ряд других [3]. В этой связи, одним из наиболее интересных вариантов материалов многослойного покрытия может являться пара Ta₂O₅/SiO₂ [4]. Интерес к сочетаниям таких материалов вызван не только их оптическими параметрами, но и химической инертностью, радиационной стойкостью и механическими характеристиками. Отметим также, что тот или иной метод нанесения при вариации режимов приводит к формированию

Пушкин Дмитрий Борисович¹, вед. инженер.

E-mail: pushkindb@sialuch.ru

Скрябин Андрей Станиславович², доцент, к.т.н.

Жупанов Валерий Григорьевич¹, нач. лаб.

Турьянский Александр Георгиевич³, зав. лаб., д.ф.-м.н.

Сенков Вячеслав Маркович³, с.н.с., к.ф.-м.н.

¹ АО «НИИ НПО ЛУЧ».

Россия, 142100, Московская обл., г. Подольск,

Железнодорожная ул., 24.

² МГТУ им. Н. Э. Баумана.

Россия, 105005, Москва, 2-я Бауманская ул., 5/1.

³ Физический институт им. П. Н. Лебедева РАН.

Россия, 119991, Москва, Ленинский проспект, 53.

Статья поступила в редакцию 12.07.2024

После доработки 2.08.2024

Принята к публикации 12.12.2024

Шифр научной специальности: 2.2.3

© Пушкин Д. Б., Скрябин А. С., Жупанов В. Г.,
Турьянский А. Г., Сенков В. М., 2024

покрытий с различными свойствами. Отдельные аспекты радиационной прочности зеркал на основе Ta₂O₅/SiO₂ обсуждаются в [5].

В данной работе представлены некоторые результаты экспериментальной апробации нанесения тонкоплёночных многослойных покрытий на основе Ta₂O₅/SiO₂ с помощью ионного распыления (ion beam sputtering IBS) [6], который позволяет получать покрытия с достаточно низким количеством дефектов, а также высоким качеством межслойных интерфейсов. Несмотря на известный опыт [7] в части применения данного подхода в настоящий момент не ясны все возможности IBS для получения оптических структур с предельными характеристиками, работающих в условиях высоких радиационных нагрузок. Это обуславливает актуальность данного исследования. Дополнительно также необходимо отметить, что для успешной разработки и создания указанных зеркал на производстве также необходимо развитие достаточно простых, но, в то же время, точных лабораторных методов контроля качества структур. Одним из вариантов может являться использование характеристического рентгеновского излучения с целью измерения дифракции и коэффициента отражения. Однако необходимы также дополнительные апробационные работы.

Методики нанесения покрытий и их исследований

В качестве материала с низким показателем преломления диэлектрического зеркала выбран SiO₂. На предварительной стадии исследований был проведен подбор материала с высоким показателем преломления из набора Nb₂O₅, Ta₂O₅, ZrO₂, HfO₂, Al₂O₃, для чего было выполнено следующее. На образцы из оптического стекла К9, имеющие размеры (25×25×10) мм, различными методами напыления были нанесены однослойные оптические покрытия, состоящие из различных пленкообразующих материалов, указанных выше. Толщина образцов была подобрана таким образом, чтобы отражение от задней поверхности образца не попадало на линзовый растр и не вносило искажения в измерения. Оптическая толщина покрытий в каждом случае была одинакова и равна $d_{\text{опт}} = \lambda = 1070$ нм, где λ – длина волны лазера. Затем образцы подвергались воздействию лазерного излучения мощностью 100 Вт, и с помощью метода Шака-Гартмана [8] определялось локальное изменение формы облучаемого силовым лазером участка поверхности от исходной. Полученные данные об изменении формы (см. табл. 1) служили основой для выбора материала и способа его нанесения.

Таблица 1

Результаты измерений отклонения формы поверхности

Материал плёнки	Метод осаждения	Изменение формы, нм
SiO ₂	Ионно-лучевое распыление в среде атомарного кислорода	19
	Магнетронное распыление	37
	Ионно-лучевое распыление с ассистированием источником торцевого Холла	38
	Электронно-лучевое испарение	60
Ta ₂ O ₅	Ионно-лучевое распыление в среде атомарного кислорода	24
	Ионно-лучевое распыление с ассистированием источником торцевого Холла	37
	Электронно-лучевое испарение	70
ZrO ₂	Ионно-лучевое распыление с ассистированием источником торцевого Холла	35
	Магнетронное распыление	45
	Электронно-лучевое испарение	68
HfO ₂	Ионно-лучевое распыление с ассистированием источником торцевого Холла	33
	Ионно-лучевое распыление в среде атомарного кислорода	30
	Электронно-лучевое испарение	60

Из таблицы 1 видно, что наименьшее изменение формы поверхности наблюдается у покрытий из Ta_2O_5 и SiO_2 , нанесенных методом ионно-лучевого распыления в среде атомарного кислорода. Поэтому для проведения дальнейших исследований были использованы именно эти материалы.

Нанесение диэлектрических многослойных покрытий проведено в вакуумной камере объемом 1 м^3 методом IBS ионами ксенона в среде кислородной плазмы при рабочем давлении 2×10^{-4} мбар. Распыляемые мишени Ta_2O_5 и Si позиционировались в камере под углом 45° к оси пучка и вращались по заданному закону. Окисление проводится источником индукционно-связанной плазмы с низкой энергией генерируемого пучка (15–50 эВ).

Контроль процесса осаждения проводился с помощью комбинированной системы оптического контроля, которая включала монохроматический и широкополосный контроль. Широкополосный оптический контроль позволял выполнять измерения спектра пропускания покрытия подложки в процессе напыления на каждом обороте подложки вокруг оси вакуумной камеры; за один оборот последовательно выполняются измерения на всех вращающихся подложках в диапазоне от 400 нм до 1100 нм. Монохроматический оптический контроль позволяет выполнять измерения спектра пропускания покрытия образца-свидетеля на одной выбранной длине волны в указанном диапазоне. Остановка осаждения каждого слоя и переход к осаждению следующего слоя осуществлялась при достижении минимума функции невязки широкополосного оптического контроля.

Измерение оптических свойств проводилось на спектрофотометре Agilent Cary 7000 в диапазоне длин волн 300–1300 нм с разрешением 1 нм. Исследование морфологии и структуры покрытий проведено методом рентгеновской рефлектометрии на приборе CompeFlex 5 в пределе скользящих углов с шагом $0,002^\circ$. Интерпретация проводилась с помощью методики [9]. Исследование фазового состава покрытий проведено с помощью рентгенофазового анализа на том же приборе в диапазоне углов $2\theta \approx 14\text{--}134^\circ$ с шагом $0,1^\circ$. Расшифровка проведена с помощью ICDD PDF2 базы данных [10].

Результаты экспериментов и их обсуждение

Независимые измерения спектральных коэффициентов отражения R и пропускания T полученных зеркал продемонстрировали, что для них значения R были выше 99,9 % в ближнем ИК (950–1160 нм) и более 98,5 % для ближнего УФ (360–380 нм). ИК-диапазон является основным рабочим, а высокое отражение в диапазоне УФ вызвано формированием зеркала третьего порядка от заданной длины волны основной гармоники. Отметим, что пропускание в этих диапазонах менее 0,1 %. Таким образом, поглощение A в целевом диапазоне не выше 0,03 % с явной тенденцией роста при переходе к УФ-диапазону (до $\approx 10\%$, что вероятнее всего связано с пропусканием Ta_2O_5 в данной области спектра). Отметим, что полученные образцы с точки зрения достигаемого отражения находятся в хорошем согласии с данными других авторов [11], исследовавших применение ВЧ-магнетронов для нанесения зеркал.

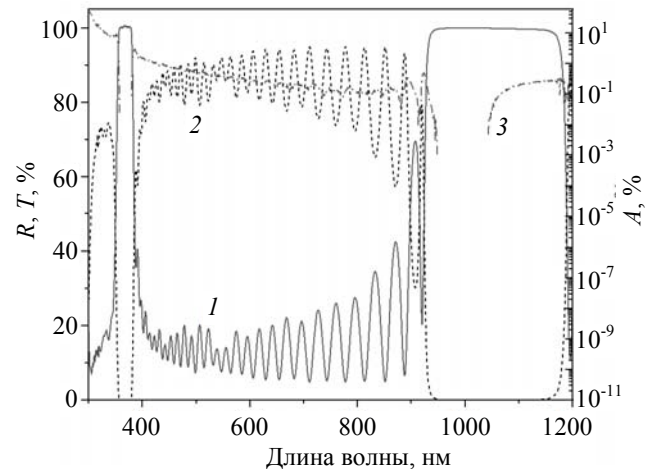


Рис. 1. Спектральные оптические характеристики зеркала: 1 – R , 2 – T и 3 – A

Результаты рентгеновской рефлектометрии представлены на рисунке 2, где изображены как исходные данные (линия 1), так и результаты подгонки (линия 2). Эти данные являются исходными для получения информации о внутренней структуре многослойного покрытия. В таблице 2 представлены результаты обработки, включающие данные о толщинах h_i , плотностях ρ_i и шероховатостях σ_i покрытий, а также подложки.

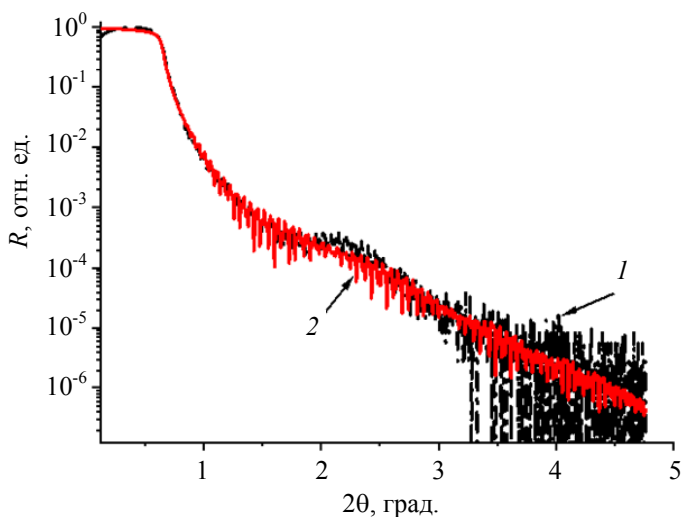


Рис. 2. Результаты рентгеновской рефлектометрии: 1 – исходный спектр и 2 – кривая подгонки

Таблица 2

Структура зеркального покрытия Ta₂O₅/SiO₂

Материал	h_i , нм	ρ_i , г/см ³	σ_i , нм
Ta ₂ O ₅ (верхний)	116,2	7,7	0,5
SiO ₂ (покрытие)	179,6	2,1–2,2	0,7
Ta ₂ O ₅ (покрытие)	125,7	7,2–8,2	0,5
SiO ₂ (подложка)	–	2,2	0,5

Полученные данные свидетельствуют, что получаемые слои Ta₂O₅ характеризуются несколько меньшими значениями плотности, чем это характерно для массивных образцов данных оксидов (от 8,18 до 8,37 г/см³ для различных фазовых состояний). Плотность слоёв SiO₂ несколько ближе к референсным плотностям аморфизированного кремнезёма ($\approx 2,2$ г/см³). Шероховатости слоёв достаточно близки с исходной шероховатости подложки, которая была $\approx 0,5$ нм. Верхний слой оксида тантала имел плотность 7,7 г/см³ при толщине 116,2 нм. Обращает на себя внимание наличие выпуклости рефлектограммы вблизи угла $2\theta \approx 2,2^\circ$. Для ее объяснения был выполнен расчет с дополнительным верхним слоем Ta₂O₅. Для иллюстрации на рисунке 2 представлена подгоночная кривая для случая толщины 3,0 нм и плотности 6,0 г/см³. В результате полного совпадения с экспериментальными данными достигнуто не было. Возникновение данной выпуклости в нашем случае может быть обусловлено действием растягивающих напряжений, возникающих в плёнке [12].

Данные рентгеновской дифракции представлены на рисунке 3 для случая CuK_α излу-

чения. Здесь изображены дифрактограммы, снятые со стороны подложки 1, а также со стороны зеркала 2.

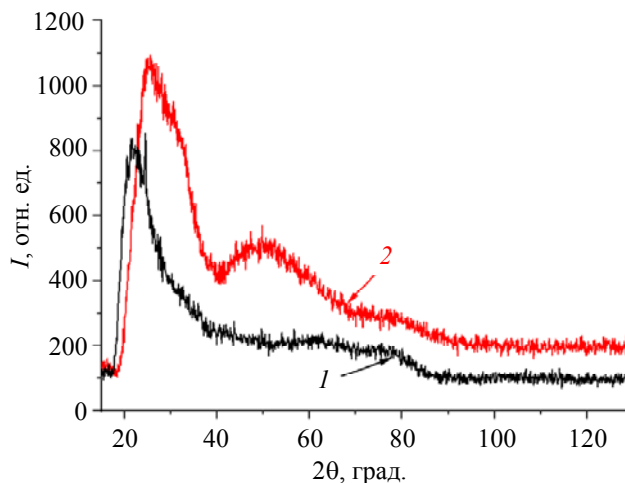


Рис. 3. Дифрактограммы подложки (1) и подложки с покрытием (2)

Для подложки типична дифракционная картина плавленого аморфизированного кварца, что выражалось в регистрации аморфного гало в диапазоне углов $2\theta \approx 20-80^\circ$. В случае покрытия данное гало также было обнаружено, но оно было осложнено наличием дополнительного широкого рефлекса в об-

ласти $2\theta \approx 40\text{--}60^\circ$, что, по всей видимости, обусловлено аморфностью нанесенных слоёв. Полученные данные согласуются с данными других авторов, изучавших свойства осажденных тонких плёнок Ta_2O_5 [13]. Хотелось бы также отметить, что аморфные плёнки характеризуются большей шириной запрещённой зоны E_g по сравнению с кристаллическими [13]. В свою очередь, значения E_g влияют на общее поглощение в плёнке и, как следствие, на конечное значение R . Так, в случае более низких E_g достижение высоких R было бы возможно при использовании существенно большего числа пар слоёв, чем при высоких E_g . В этой связи, для достижения высоких значений R необходимо применять материалы с высоким E_g для уменьшения поглощения.

Заключение

Представленное исследование продемонстрировало возможности комплексного рентгеновского анализа многослойных тонкоплёночных покрытий, включавшего рефлектометрию и дифракцию, а также оптические измерения. В результате было показано, что на имеющемся стенде с использованием метода распыления ионным пучком возможно получение зеркал на основе аморфизированных слоёв пары $\text{Ta}_2\text{O}_5/\text{SiO}_2$. Для них были определены толщины, шероховатости, а также плотности, которые в 1,07–1,16 раз были меньше плотностей массивного оксида тантала. Плотность слоёв SiO_2 была близка к плотности подложки. Для данных зеркал коэффициент отражения в ИК-области был измерен выше

99,9 %. Представленные результаты могут представлять интерес при получении новой информации о связи структурных параметров покрытий с достигаемыми оптическими характеристиками, а также при отладке техпроцесса их получения.

ЛИТЕРАТУРА

1. *Бабаянц Г. И., Гаранин С. Г. и др.* / Квантовая электроника. 2005. № 7. С. 663–666.
2. *Zhang Q., Shen J. et al.* / Int. J. Inorg. Mater. 2000. № 2. P. 319–323. [https://doi.org/10.1016/S1466-6049\(00\)00037-4](https://doi.org/10.1016/S1466-6049(00)00037-4)
3. *Fournet C., Pinot B. et al.* / Proc. SPIE 1624 Laser-Induced Damage in Optical Materials. 1991. № 1624. P. 282–293. <https://doi.org/10.1117/12.60095>
4. *Schiltz D., Patel D. et al.* / Advanced Photonics. 2015. OSA Technical Digest (online) (Optica Publishing Group, 2015). P. NS4B.3. <https://doi.org/10.1364/NOMA.2015.NS4B.3>
5. *Schiltz D., Patel D. et al.* / Appl. Opt. 2017. № 56. P. C136–C139. <https://doi.org/10.1364/AO.56.00C136>
6. *Mateev M., Lautenschläger T. et al.* / Eur. Phys. J. B. 2018. № 91. P. 45. <https://doi.org/10.1140/epjb/e2018-80453-x>
7. *Huang C. Y., Ku H. M., et al.* / Opt. Rev. 2009. № 16. P. 274–275. <https://doi.org/10.1007/s10043-009-0051-2>
8. *Александров А. Г., Завалова В. Е. и др.* / Квантовая электроника. 2010. № 4. С. 321–326.
9. *Попов Н. Л., Успенский Ю. А. и др.* / Физика и техника полупроводников. 2003. № 6. С. 700–705. <https://www.icdd.com/pdf-2/>
10. *Melnyk A., Potts C. A. et al.* / Appl. Opt. 2016. № 55. P. 3645–3649. <https://doi.org/10.1364/AO.55.003645>
11. *Songwen D., Feng W. et al.* / Chinese Optics Letters. 2013. № 11. P. 10, S10701-1. doi: 10.3788/COL201311.S10701.
12. *Sathasivam S., Williamson B. A. D. et al.* / J. Phys. Chem. C. 2017. № 121. P. 202–210. doi: 10.1021/acs.jpcc.6b11073

PACS: 42.79.-e

Structure and optical properties of thin $\text{Ta}_2\text{O}_5/\text{SiO}_2$ multilayer mirror prepared by ion beam sputtering

D. B. Pushkin¹, A. S. Skriabin², V. G. Zhupanov¹, A. G. Turyansky³ and V. M. Senkov³

¹ Luch Scientific Production Association
24 Zheleznodorozhnaya st., Podolsk, Moscow Region, 142103, Russia
E-mail: pushkindb@sialuch.ru

² Bauman Moscow State Technical University
5/1 2^{ya} Baumanskaya st., Moscow, 105005, Russia

³ Lebedev Physical Institute of the Russian Academy of Sciences
53 Leninskiy Ave., Moscow, 119991, Russia

Received 12.07.2024; revised 2.08.2024; accepted 12.12.2024

The use of mirror optics based on multilayer dielectric coatings is currently of significant interest for the design of radiation hardened optics. In this work, we tested the ion beam sputtering method to deposit an IR mirror based on the Ta₂O₅/SiO₂ pair on a fused quartz substrate. The obtained samples were studied with spectrophotometry in the visible and IR ranges, X-ray reflectometry and diffraction. As a result, it was shown that the applied method made it possible to obtain amorphous layers of Ta₂O₅ and SiO₂. For the achieved coating thicknesses and densities, the near-IR reflectance exceeded 99.9 %. In general, the results demonstrated that the complex diagnostic technique used can be useful not only for studying the structure and composition of such coatings, but also for indicating deviations in the shape of samples, for example, due to tensile mechanical stresses.

Keywords: dielectric thin films; ion sputtering; antireflective and mirror coatings.

REFERENCES

1. Babayants G. I., Garanin S. G. et al., Quantum electronic, № 7, 663–666 (2005).
2. Zhang Q., Shen J. et al., Int. J. Inorg. Mater., № 2, 319–323 (2000). [https://doi.org/10.1016/S1466-6049\(00\)00037-4](https://doi.org/10.1016/S1466-6049(00)00037-4)
3. Fournet C., Pinot B. et al., Proc. SPIE 1624 Laser-Induced Damage in Optical Materials, № 1624, 282–293 (1991). <https://doi.org/10.1117/12.60095>
4. Schiltz D., Patel D. et al., Advanced Photonics. 2015, OSA Technical Digest (online) (Optica Publishing Group, 2015), NS4B.3 (2015). <https://doi.org/10.1364/NOMA.2015.NS4B.3>
5. Schiltz D., Patel D. et al., Appl. Opt., № 56, C136–C139 (2017). <https://doi.org/10.1364/AO.56.00C136>
6. Mateev M., Lautenschläger T. et al., Eur. Phys. J. B, № 91, 45 (2018). <https://doi.org/10.1140/epjb/e2018-80453-x>
7. Huang C. Y., Ku H. M. et al., Opt. Rev., № 16, 274–275 (2009). <https://doi.org/10.1007/s10043-009-0051-2>
8. Aleksandrov A. G. and Zavalova V. E., Quantum electronic, № 4, 321–326 (2010).
9. Popov N. L. and Uspenskiy Yu. A., Semiconductors, № 6, 700–705 (2003).
10. <https://www.icdd.com/pdf-2/>
11. Melnyk A., Potts C. A. et al., Appl. Opt., № 55, 3645–3649 (2016). <https://doi.org/10.1364/AO.55.003645>
12. Songwen D., Feng W. et al., Chinese Optics Letters, № 11, 10, S10701-1 (2013). doi: 10.3788/COL201311.S10701.
13. Sathasivam S., Williamson B. A. D. et al., J. Phys. Chem. C., № 121, 202–210 (2017). doi: 10.1021/acs.jpcc.6b11073.