

UNIVERZITET U NOVOM SADU PRIRODNO-MATEMATIČKI FAKULTET DEPARTMAN ZA FIZIKU



NHAS FULLET A FROM WE DOWN

The state	 	18 ДЕЦ 2003
and Alignet		ê ê û j
0603	1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1	9/825

Mirjana Šiljegović

Refrakcija na jednoslojnim i dvoslojnim tankim filmovima i balku nekih amorfnih halkogenida

-diplomski rad-

Novi Sad, 2003.

Koristim priliku da se zahvalim:

dr. Svetlani Lukić, redovnom profesoru Prirodno-matematičkog fakulteta u Novom Sadu; mentoru ovog rada; najpre na izboru problematike; a potom i na svesrdnoj pomoći prilikom interpretacije rezultata i analize teksta; kao i nizu korisnih sugestija koje su bile od neprocenjive koristi tokom rada,

dr. Dragoslavu Petroviću, redovnom profesoru Prirodnomatematičkog fakulteta u Novom Sadu, koji mi je, kao šef katedre za eksperimentalnu fiziku kondenzovanog stanja materije, omogućio da se bavim problematikom iz koje je proistekao ovaj rad,

dr. Imreu Gutu, docentu Prirodno-matematičkog fakulteta u Novom Sadu, na pomoći pri postavci eksperimenta za ispitivanje disperzije indeksa prelamanja stakla As₂S₃ i obradi rezultata,

mr. Feodoru Skubanu, asistentu na Prirodno-matematičkom fakultetu, na nizu korisnih sugestija, ali pre svega, na velikom razumevanju i strpljenju,

konačno, najveću zahvalnost dugujem **mojoj porodici** na neiscrpnoj podršci i ljubavi svih ovih godina.

1. UVOD	1
1.1 Karakteristike faznih dijagrama sistema As-S i Se-Te	1
1.2. Metod termičkog naparavanja tankih filmova	6
2. OPTIČKE OSOBINE TANKIH FILMOVA	9
2.1. Jednoslojni filmovi	9
2.1.1. Reflektanca i transmitanca jednoslojnih filmova	9
2.1.2. Apsorpcija	12
2.1.3. Optičke konstante filmova	13
2.1.4. Nehomogeni filmovi	15
2.2. Višeslojni sistemi	17
2.2.1. Teorijske postavke	17
2.2.2. Tipični višeslojni sistemi	18
3. DISPERZIJA INDEKSA PRELAMANJA	21
3.1. Zakon refrakcije	21
3.2. Osnovna teorija disperzije	22
3.3. Realne disperzione krive za stakla	24
3.4. Neki teorijski modeli disperzije indeksa prelamanja	25
3.4.1. Cauchy-eva disperziona formula	25
3.4.2. Hartmann-ova disperziona formula	25
3.4.3. Sellmeier-ova disperziona formula	25
3.4.4. Helmholtz-Ketteler-Drude-ova disperziona formula	26
3.4.5. Schott-ova disperziona formula	26
3.4.6. Herzberger-ova disperziona formula	27
3.4.7. Geffcken-ova disperziona formula	27
3.4.8. Buchdahl-ova disperziona formula	27
4. OPTIČKE KARAKTERISTIKE JEDNOSLOJNIH I DVOSLOJNIH FILMOVA I BALKA HALKOGENIDA	29
4.1. Transparentni spektri-osnovne karakteristike eksperimenta	29
4.2. Karakteristike transparentnih spektara	30
4.2.1. Jednoslojni tanki film As_2S_3	30
4.2.2. Jednoslojni tanki film Se ₆₀ Te ₄₀	31
4.2.3. Dvoslojni film $As_2S_3/Se_{60}Te_{40}$	33
4.3. Disperzija indeksa prelamanja	34
4.3.1. Disperzija indeksa prelamanja filma As_2S_3	37
4.3.2. Disperzija indeksa prelamanja filma Se ₆₀ Te ₄₀	38

4.3.3. Disperzija indeksa prelamanja filma As ₂ S ₃ /Se ₆₀ Te ₄₀	39
4.3.4. Disperzija indeksa prelamanja stakla As_2S_3	40
4.4. Širina optički zabranjene zone	44
4.4.1. Disperzija apsorpcionih koeficijenata	44
4.4.2. Metode određivanja širine optički zabranjene zone	49
5. ZAKLJUČAK	51
6. LITERATURA	52

-

· --

1. <u>UVOD</u>:

Pod terminom amorfno podrazumeva se specifično, agregatno stanje tela, okarakterisano odstupanjima od uređenosti strukture svojstvene klasičnom, čvrstom stanju. Mikroskopski se amorfno stanje karakteriše kratkodometnim uređenjem strukture, odsustvom njene trodimenzionalne periodičnosti i velikim brojem nezasićenih hemijskih veza. Za razliku od kristala, elementarne ćelije amorfnog stanja su dezorijentisane i međusobno haotično raspoređene. Dužina atomskih veza i uglovi među njima odstupaju od konstantnih vrednosti. Sudeći po ovome, amorfno stanje bi se u prvoj aproksimaciji moglo identifikovati sa tečnošću. S druge strane, mehanička svojstva neuređenih sistema, najpre viskoznost, dozvoljavaju da se oni tretiraju kao čvrsta tela, ali za razliku od kristala, amorfne supstance su izotropne u odnosu na optičke, električne, mehaničke i druge karakteristike. Stoga se amorfno stanje definiše kao svojevrstan prelaz između tečnog i kristalnog stanja materije.

Postoji više podela amorfnih materijala. Jedna od njih je da se, polazeći od forme u kojoj se nekristalni sistem priprema, amorfni materijali dele na stakla (koristi se i termin balk) i amorfne filmove.

U ovom radu su ispitivani optički parametri tri tanka, halkogenidna filma: As_2S_3 , $Se_{60}Te_{40}$, koji pripadaju grupaciji jednoslojnih sistema, i $As_2S_3/Se_{60}Te_{40}$, koji spada u grupaciju dvoslojnih sistema. Tematika koja će ovde biti izneta, odnosi se na kristalne filmove, ali isto tako može biti primenjena i na amorfne filmove.

1.1. KARAKTERISTIKE FAZNIH DIJAGRAMA SISTEMA As-S i Se-Te

<u>Sistem As-S</u>

Prvi podaci koje imamo o staklima iz ovog sistema potiču od Frerichs-a /1/. On je sintetizovao stakla iz sistema As-S u intervalu koncentracija od 20-80 atomskih jedinica sumpora. Sintezu je radio u ampulama od stakla "pirex", u vakuumu, sa kaljenjem u hladnoj vodi ili ledu. Pokazalo se, da je staklo sa sastavom od 20-60 atomskih jedinica arsena stabilnije na kristalizaciju, a staklo sa 80 atomskih jedinica sumpora je plastičnije i lako kristališe. Za dobijanje halkogenidnih stakala Aŭo i Kokopинa /2/ su prvi primenili metod vakuumske sinteze. Pritom su zapazili da su stakla u sistemu As-S, pri sintezi, ista kao i stakla u steheometrijskom sastavu. Oblast obrazovanja stakla u sistemu As-S prostire se od 5.4-45 atomskih jedinica mase As. Sintezu su radili u zatvorenim teglama u inertnoj atmosferi. Od maksimalne temperature sinteze, legura se lagano hladila u isključenoj peći. U intervalu koncentracije 5-15 atomskih procenata As, kao rezultat sinteze As i S pri 900° C dobija se staklo slojevite strukture. Zbog toga je predložena sinteza As₂S₃ i S, što je dozvoljavalo značajno sniženje temperature (do 500°C), a da bi se pri tom dobilo staklo iste vrste.

Tanaka /3/ je dobio staklo u sistemu As-S metodom isparavanja rastopa u struji azota. Smešu, sastavljenu od As_2S_3 zagrevao je do 530-560°C, a para se taložila na temperaturi 310-380 °C.





Slika 1.1. Dijagram sastava sistema As-S. I-staklo, II-kristal

Hruby /4/ je ukazao na postojanje druge oblasti obrazovanja stakla u sistemu As-S u intervalima koncentracije 51-66 atomskih procenata As (slika 1.1.). Staklo je dobijeno metodom vakuumske sinteze elemenata, a maksimalna temperatura sinteze je za 300-400°C veća od temperature likvidusa odgovarajućih legura. Stabilnost stakla pri toj temperaturi je nekoliko sati od poslednjeg kaljenja i potapanja u hladnoj vodi. Autor ističe da bez dužeg izlaganja na temperaturi 300-400°C iznad temperature likvidusa, dobijanje stakla u toj oblasti koncentracije nije moguće. Zaključeno je da primena visokog pritiska i temperature dozvoljava širenje oblasti obrazovanja stakla sistema As-S. Stakla su dobijena pri visokom pritisku na temperaturama iznad 200°C. Na taj način dobijena su stakla u sastavu As od 45-70 atomskih procenata.

U sistemu As-S poznata su četiri jedinjenja: As_2S_3 , As_4S_4 , As_2S_5 , As_4S_3 , a od njih As_2S_3 i As_4S_4 postoje u prirodi u obliku minerala. As_2S_5 dobija se delovanjem H₂S na soli As kiseline u jako kiseloj sredini, ili kristalizacijom stakla steheometrijskog sastava pod uticajem visokog pritiska i temperature.

Stakla u sistemu As-S postojana su na delovanje kiseonika i vlage iz vazduha. Temperature razmekšavanja T_g stakla sistema As-S određivane su viskozimetrima, metodama DTA i dilatometrijom. Mimoilaženja u vrednosti T_g , pronađena u prve dve metode, najveća su za stakla bogata sumporom, a gube se dodavanjem As₂S₃ sastavu staklu (slika 1.2).



Slika 1.2. Zavisnost Tg od sastava sistema As-S. 1-dobijena DTA-metodom, 2-viskozimetrom, 3-dilatometrijski

Pri povećanju sadržaja As u staklu, povećava se otpornost na kristalizaciju. Staklo, koje sadrži 6 atomskih procenata As kristališe pri sobnoj temperaturi u toku 24 časa, uz izdvajanje S rombične strukture. Staklo u sastavu As_2S_5 ne može kristalisati metodom termičkog zagrevanja. Staklo u intervalu od 5-16 atomskih procenata As delimično kristališe, kao rezultat dugog zagrevanja pri 60°C i uz izdvajanje S rombične strukture.

As₂S₃ kristališe u potpunosti kao rezultat zagrevanja na 280°C u toku 30 dana.

Staklo u svim intervalima koncentracije može kristalisati pod uticajem visokog pritiska i temperature (30-70 kbar). Kao rezultat su dobijene nove modifikacije poznatih jedinjenja. Stakla sa velikom količinom S kristališu pod uticajem svetlosti, a to daje mogućnost korišćenja u holografiji.

Stakla iz druge oblasti (51-66 atomskih procenata As) razlikuju se po sposobnosti kristalizacije (slika 1.1.). Njihova sklonost ka kristalizaciji raste pri povećanju sadržaja As i počinje od 56 atomskih procenata As. Oni ne kristališu na sobnoj temperaturi.

Staklo koje sadrži 51-56 atomskih procenata As kristališe na sobnoj temperaturi u toku nekoliko sati (poželjan sastav 56 atomskih procenata As). Ta stakla su plastična na sobnoj temperaturi, T_g je niža od sobne temperature.



Slika 1.3. Dijagrami sastava sistema As-S

Prvi dijagram sistema As-S napravio je Jonker /5/ (slika 1.3. a). Na dijagramu je predstavljena ravnoteža para-tečnost. Nivo likvidusa je na podeoku od 40-55 atomskih procenata As. Na slici 1.3.b. dat je dijagram sastava sistema As-S u intervalu od 40-100 atomskih procenata As. U sistemu se vidi oblast raslojavanja od strane As, a takođe i dva dvojna jedinjenja As_2S_3 i As_4S_4 koja se polimorfno pretvaraju pri 175°C i 265°C. As_4S_3 se ne pojavljuje na dijagramu sastava.

Hruby je predložio drugu varijantu dijagrama sastava sistema As-S u oblasti koncentracije od 40-80 atomskih procenata As (slika 1.1.). Po njegovom mišljenju, kako As_2S_3 tako i As_4S_4 , tope se inkongruentno. As_4S_4 uzajamno deluje sa As po eutektičkom tipu. Sastav eutektika je 56 atomskih procenata As i temperatura topljenja 190°C. Pri temperaturi od 130°C na krivama DTA javlja se endotermni efekat koji se, po mišljenju autora, javlja kao efekat topljenja. Ovaj dijagram prikazan je na slici 1.4. Staklo u intervalu od 21-30 atomskih procenata As ne može kristalisati, što je uslovljeno postojanjem eutektika u toj oblasti sastava, kao i disocijacijom As_2S_5 na As_2S_3 i S pri topljenju, čime se povećava broj strukturnih jedinica i oblast obrazovanja stakla. Blago nagnuta kriva likvidusa u oblasti povećanja S govori o prisutnosti mikrokapljica u tom staklu. To potvrđuje i mikroskopsko proučavanje stakla sa većim sadržajem S.



Slika 1.4. Dijagram sastava sistema As-S Sposobnost kristalizacije stakla: termička kristalizacija

Na slici 1.5. dat je dijagram sastava sistema As-S. Dijagram sastava je dat na osnovu podataka sa DTA i RFA krivih, koje su snimljene pri atmosferskom pritisku.



Slika 1.5. Dijagram sastava sistema As-S Sposobnost kristalizacije stakla: kristalizacija pod pritiskom

Sumpor u datim uslovima kristališe pri visokom pritisku u vidu tzv. faze "4,04 Å". Rentgenografskom i metodom mikrostrukture dokazana je egzistencija jedinjenja As_2S_5 . Rezultati pokazuju da se struktura As_2S_5 odnosi na romboedarsku singoniju sa parametrom elementarne ćelije, a=10.37 Å, b=9.90 Å i c=8.66 Å. Istraživanje strukture As_2S_5 kristalisane pri visokom pritisku, sprovođeno je metodom NKR. Dokazano je da je u tom jedinjenju prisutan samo trovalentni As. Karakteristika jedinjenja As_2S_3 je u tome što se atomi As spajaju kao lanac sumpora S-S. Postojanje takvih lanaca potvrđuje istraživanje IK-spektra stakla As_2S_5 .

Postoje dokazi o novoj, β modifikaciji As₄S₄. Osim poznatih stabilnih modifikacija, pod uticajem visokog pritiska i temperature stvara se nekoliko metastabilnih modifikacija As₂S₃ i As₄S₄. Na

temperaturi iznad 400°C i pri pritisku 40-70 kbar stvara se niskotemperaturna faza β - As₂S₃. Na termogramima ove faze, uočava se endotermni efekat topljenja na 210 °C.

U intervalu temperature 700-1000°C i pritiska 40-70 kbar, stvara se visokotemperaturna faza γ -As₂S₃. Na termogramu te faze javljaju se dva efekta: egzo efekat na 190°C koji odgovara prelazu $\gamma \rightarrow \beta$ i endo efekat na 210°C, koji odgovara topljenju β -As₂S₃.

Za As₄S₄ takođe je ustanovljeno da mimo stabilne α modifikacije, poseduje još dve faze: niskotemperaturnu β fazu (temperatura 400-700°C i pritisak 40-70 kbar) i visokotemperaturnu γ fazu (temperatura 800-1000°C i pritisak 40-70 kbar).

• Sistem Se-Te

Oblast obrazovanja stakla u sistemu Se-Te istraživana je od strane raznih autora. Stakla su dobijali metodom vakuumske sinteze elemenata, sa maksimalnom temperaturom sinteze od 500°C i kaljenjem u hladnoj vodi. Pri takvim uslovima oblast obrazovanja stakla je u rasponu od čistog Se, do 10 atomskih procenata Te. Kaljenje uskih ampula u ohlađenoj masi pri temperaturi -20°C omogućava dobijanje stakla u obliku legure koja sadrži do 35 atomskih jedinica Te. Sličnim metodama pokazano je da se iz stakla može izdvojiti do 25 atomskih procenata Te.

Metodom Spray-Cooling /6/ može se dobiti materijal u amorfnom stanju sa 40-70 atomskih procenata Te. Metoda se sastoji u tome da se topljenjem kroz otvor na dnu ampule materijal rasplinjava u ohlađenu sredinu pod pritiskom inertnog gasa. Ovom metodom je utvrđeno da temperatura razmekšavanja T_g raste od 45°C za čist Se, do 75°C za staklo sastava Se₆₀Te₄₀.



Slika 1.6. Dijagram sastava sistema Se-Te

Istraživanje sistema Se-Te termičkom i rentgentskom metodom pokazalo je da se u sistemu stvara neprekidan niz čvrstog rastvora (slika 1.6.).

1.2. METOD TERMIČKOG NAPARAVANJA TANKIH FILMOVA

Osobine tankih filmova su posledica njihove specifične strukture, koja je uglavnom karakteristika procesa do kojih dolazi prilikom njihovog formiranja. Tipične debljine tankih filmova su 0.5-10.0 µm. Sastav im je identičan po celoj debljini filma, a struktura skoro homogena i izotropna.

Metodi koji se koriste za preparaciju tankih filmova čvrstih materijala su:

-katodno raspršenje

-taloženje iz gasovite faze električnim tinjavim pražnjenjem

-hemijsko taloženje iz gasovite faze

-elektrolitičko (galvansko) taloženje pri visokim gustinama struje

-termičko ili lasersko isparavanje i kondezovanje u vakuumu.

Za dobijanje tankih filmova halkogenidnih poluprovodničkih stakala najčešće se koristi <u>metod</u> <u>termičkog ili laserskog naparavanja u vakuumu.</u> Sam proces isparavanja se može objasniti u okviru kinetičke teorije gasova.

Vakuumsko taloženje tankih filmova sastoji se iz sledećih procesa: 1) prelaz amorfnog uzorka iz kondezovane faze (čvrste ili tečne) u gasovitu, 2) prenošenje para uzorka u prostoru od isparivača do podloge, pri smanjenom pritisku gasa, 3) kondenzovanje para uzorka na podlogu.

Kod tehnike laserskog isparavanja materijala u vakuumu, svi uređaji za zagrevanje se nalaze spolja, a sam tigl sa uzorkom se uopšte ne zagreva, što je velika prednost ove metode. Šema aparature prikazana je na slici 1.7.



Slika 1.7. Laserski vakuum isparivač

Na slici 1.8.a šematski je prikazana konstrukcija aparature korišćene pri proučavanju procesa isparavanja amorfnog Ge_2Se_3 i polikristalnih smesa GeSe i $GeSe_2$.Na rotacionom disku (slika 1.8.b) raspoređene su različite mete-podloge. Obrtanjem diska istovremeno se dobija nekoliko amorfnih uzoraka pri jednom radnom ciklusu.

Maseno-spektrometrijskom analizom sastava para i hemijskom analizom nataloženih filmova različite debljine, utvrđeno je da se samo pri tačno definisanim uslovima može ostvariti vremenska nezavisnost sastava filmova. Frakciono razdvajanje jedinjenja može se znatno smanjiti odgovarajućim izborom mase materijala u isparivaču.

Isparavanje pod dejstvom laserskog zračenja omogućava da se supstanca ispari iz tačno definisane male količine uzorka, uz postizanje visoke lokalne temperature isparavanja.

Fizičke osobine, fazni sastav i struktura tankih filmova zavise od tehnologije njihovog dobijanja, a naročito od temperature podloge na koju se supstanca taloži.



Slika 1.8. Opšta šema aparature za taloženje amorfnih filmova metodom termičkog isparavanja u vakuumu (a), i šema rotacionog držača podloga (nosača) i mete (b)

1-posuda od tantala, 2-polazni materijal, 3-prethodno zagrejan bakarni blok u koji se postavlja Ta-posuda sa polaznim materijalom, 4-detektor temperature, 5-rotaciona pregrada za regulaciju protoka para, 6kvarcni piezodetektor, 7-fiksirani blok sa izmenjivim držačem podloga, 8,9-obrtni disk sa tankim metama za donji kontakt, 10-sloj halkogenidnog stakla, 11-gornji kontakt, 12,13-sistem za termičku regulaciju podloga, 14-držač podloga, 15-uzorci tankih filmova za hemijsku analizu, 16-kočnica za disk sa metama

Pri visokim temperaturama i različitim brzinama naparavanja, mogu se dobiti tanki filmovi bliski po stehiometrijskom sastavu višekomponentnom uzorku koji se isparava. Ako se radi sa unapred zadatim parametrima, npr. sa parametrima kao što su debljina ili površinska otpornost, dovoljno je odrediti trenutak kada ta veličina dostiže zadatu vrednost i prekinuti proces isparavanja. Ako se radi sa parametrima koji zavise od brzine taloženja na podlogu, npr. sa gustinom ili specifičnom otpornošću, tada se, pored debljine nataloženog filma, mora kontrolisati i brzina isparavanja.

Kako molekulski sastav para bitno utiče na strukturu kondenzata, to se masenom spektroskopijom kontroliše relativan sastav para u samom procesu naparavanja.

Dobijanje tankih filmova homogenog sastava, pogodnih za optički zapis, od stakala višekomponentnih sistema je složen zadatak, jer pri običnom termičkom isparavanju, dolazi do frakcionog razdvajanja tih materijala, usled znatne razlike parcijalnih pritisaka komponenti. Posledica toga je nehomogen sastav filma po njegovoj debljini. Nehomogenost se otklanja neprekidnim dovođenjem supstance u isparivač, kao i praćenjem brzine isparavanja.

Pri naparavanju filmova metodom diskretnog termičkog postupka, pri relativno visokoj temperaturi isparavanja, dolazi do akumulacije "teško letećih" čestica halkogenida materijala u isparivaču. Pri povećanju temperature materijal se, usled sublimacije komponenti, rasprskava i izbacuje iz otvorenih tiglova (slika 1.9.)



Slika 1.9. Otvoreni tigl

To znatno snižava optički kvalitet filma, pa ga je nemoguće koristiti za optički zapis.

Za dobijanje homogenih tankih filmova visokog optičkog kvaliteta, istraživački tim iz Rusije je predložio specijalan isparivač /7/ (slika 1.10.), koji omogućava diskretno isparavanje pri optimalno visokim temperaturama (600-800 K).



Slika 1.10. Kvarcna ćelija-isparivač; 1-Ni-Cr košuljica za zagrevanje, 2-grlo za dovođenje uzorka, 3-otvori za izlaz para, 4-kvarcna zaštita, 5-poklopac od Mo

Za ispitivanje uticaja brzine kondenzacije i temperature isparavanja na stepen homogenosti filma, konstruisan je cevasti, kvazizatvoreni isparivač (slika 1.11.), koji omogućuje brzo izvođenje postupka isparavanja u širokom temperaturskom intervalu (600-1000 K). Birajući presek dovoda para, može se upravljati brzinom naparavanja, koja kod ovog isparivača slabo zavisi od temperature.



Slika 1.11. Cevasti kvazizatvoreni isparivač: 1-tanki Ti lim (grejač), 2-termički izolator (kvarc), 3-stezaljka, 4-konus za zaptivanje

Međutim, pri dobijanju filma nekom od ovih metoda, čak i kad se obezbedi da njegov sastav odgovara polaznom staklu, struktura ne mora biti ista. Konačan efekat zavisi od niza faktora:brzine zagrevanja isparivača, temperature podloge, brzine kondenzacije i drugih eksperimentalnih uslova. Tek odgrevanjem filma, dolazi do potpunog uređivanja njegove strukture, koja tada postaje bliža strukturi polaznog stakla.

2. <u>OPTIČKE OSOBINE TANKIH FILMOVA</u>

Verovatno najranija naučna primena osobina tankih filmova bila je upotreba filmova sa srebrom za ogledala i instrumente kakav je Fabry-Perot-ov interferometar. Interesovanje za filmove sa srebrom u ranim eksperimentima bilo je ograničeno njihovim optičkim osobinama: visinom refleksije i malom apsorpcijom-za interferometre. Optička merenja, na filmovima uopšte, uključuju reflektancu i transmitancu, bilo da svetlost pada normalno ili pod nekim uglom različitim od 90[°] na podlogu, a stepen polarizacije reflektovane svetlosti može se meriti u širokom rasponu talasnih dužina. Refleksione i transparentne osobine filmova su već izračunate u elektromagnetnoj teoriji, u zavisnosti od indeksa refrakcije i debljine materijala filma. I reflektanca i stepen polarizacije reflektovanog zraka mogu biti izračunati u zavisnosti od optičkih parametara filma, dok obrnuto nije moguće.

2.1. JEDNOSLOJNI FILMOVI

2.1.1. <u>Reflektanca i transmitanca jednoslojnih filmova</u>

Za analizu reflektance i transmitance jednoslojnih filmova, uobičajeno je da se razmatranje svodi na sledeće:



Slika 2.1.

Neka svetlost pada pod uglom ϕ_0 na film indeksa prelamanja n_1 i debljine d_1 , koji je naparen na ravnoj podlozi indeksa prelamanja n_2 (slika 2.1.). Reflektanca i transmitanca mogu biti određene preko Frenelovih koeficijenata refleksije i transmisije na spojevima n_0 / n_1 i n_1 / n_2 . Najpogodnije je raditi sa komponentama svetlosnog zraka od kojih je jedna u ravni, a druga normalna na ravan upadanja. Ako električni vektor upadnog zraka leži u ravni upadanja, Frenelovi koeficijenti (amplituda refleksije i transmisije) su dati kao:

$$r_{1p} = \frac{n_1 \cos \phi_0 - n_0 \cos \phi_1}{n_1 \cos \phi_0 + n_0 \cos \phi_1} \qquad t_{1p} = \frac{2n_1 \cos \phi_1}{n_1 \cos \phi_0 + n_0 \cos \phi_1}$$
(2.1.)

Ako je električni vektor upadnog zraka normalan na ravan upadanja, odgovarajuće relacije su:

$$r_{1s} = \frac{n_1 \cos \phi_1 - n_0 \cos \phi_0}{n_1 \cos \phi_1 + n_0 \cos \phi_0} \qquad t_{1s} = \frac{2n_1 \cos \phi_1}{n_1 \cos \phi_1 + n_0 \cos \phi_0}$$
(2.2.)

Reflektanca i transmitanca su određene proizvodom reflektovanog i transmitovanog zraka, uzimajući u obzir faznu razliku $\delta_1 = 2\pi v n_1 d_1 \cos \phi_1$ između susednih zraka (v je talasni broj). U opštem slučaju n_0 , n_1 i n_2 mogu biti funkcije od v. U slučaju da se film nalazi u vazduhu, zavisnost n_0 od v se može zanemariti. S obzirom da je film okarakterisan samo parametrom n_1 , ovi rezultati se mogu primeniti samo na izotropni film. Za anizotropne filmove treba uzeti u obzir zavisnost indeksa prelamanja (refrakcije) od pravca zraka.

Rezultat sumiranja za izotropni film je dat kao:

$$R = \frac{r_1^2 + 2r_1r_2\cos 2\delta_1 + r_2^2}{1 + 2r_1r_2\cos 2\delta_1 + r_1^2r_2^2} \qquad T = \frac{n_2}{n_0}\frac{t_1^2t_2^2}{1 + 2r_1r_2\cos 2\delta_1 + r_1^2r_2^2}$$
(2.3.)

pri čemu su u formulu uvršteni Frenelovi koeficijenti iz jednačina (2.1.i 2.2.)

Promena R sa δ_1 za film sa različitim indeksima prelamanja, na podlozi indeksa prelamanja $n_2 = 1.5$ i u vazduhu ($n_0 = 1$) je prikazana na slici 2.2., u slučaju kada zrak pada normalno na film.



Slika 2.2. Zavisnost reflektance od fazne debljine

pošto je $2n_1t_1 = N/\nu_N = (N-1)/\nu_{N-1}$, i N i n_1t_1 mogu odrediti. Reflektance maksimuma R_{max} ili minimuma R_{min} su date kao:

$$R_{\max} = \left(\frac{n_2 - n_0}{n_2 + n_0}\right)^2 \qquad \qquad R_{\min} = \left(\frac{n_1^2 - n_0 n_2}{n_1^2 + n_0 n_2}\right)^2 \tag{2.4.}$$

za slučaj $n_0 > n_1 < n_2$, dok će u slučaju $n_0 < n_1 > n_2$ odgovarajući izrazi biti:

Zavisnost na slici 2.2. se može smatrati kao promena R sa debljinom za dati talasni broj. Ako zanemarimo disperziju, to se takođe može tumačiti kao promena R sa talasnim brojem za datu debljinu. Efekti disperzije za mnoge materijale u vidljivom delu spektra nisu veliki.

Ako je film dovoljno tanak, tako da se mogu dobiti dva ili više maksimuma u spektrofotometrijskoj krivoj kada svetlost pada normalno na film, tada se lako može dobiti optička debljina n_1t_1 (zanemarujući disperziju). Ako se sukcesivni maksimumi pojavljuju na v_n , v_{n-1} , tada se, pošto je $2n_1t_1 = N/v_N = (N-1)/v_{N-1}$, i N i n_1t_1 mogu odrediti. Reflektance maksimuma R_{max} ili minimuma R_{min} su date kao:

$$R_{\max} = \left(\frac{n_2 - n_0}{n_2 + n_0}\right)^2 \qquad \qquad R_{\min} = \left(\frac{n_1^2 - n_0 n_2}{n_1^2 + n_0 n_2}\right)^2 \qquad (2.4.)$$

za slučaj $n_0 > n_1 < n_2$, dok će u slučaju $n_0 < n_1 > n_2$ odgovarajući izrazi biti:

$$R_{\max} = \left(\frac{n_1^2 - n_0 n_2}{n_1^2 + n_0 n_2}\right)^2 \qquad \qquad R_{\min} = \left(\frac{n_2 - n_0}{n_2 + n_0}\right)^2 \tag{2.5.}$$

Na taj način određivanje reflektance može dati vrednosti za n_1 , a ponekad se može i proceniti disperzija. Ovaj metod, međutim, treba uzeti kao posredan, s obzirom da razni faktori mogu u realnim filmovima proizvesti greške. Različiti gubici koji se pojavljuju na kraćim talasnim dužinama, mogu dati male maksimume i nekorektno izvođenje indeksa prelamanja.

U nekim slučajevima, rezultati dobijeni eksperimentalno, veoma se dobro slažu sa onim određenim formulama (2.4. i 2.5.). Ako je film dat u obliku homogene ploče sa paralelnim stranama, na podlozi nižeg indeksa prelamanja, tada će se indeks n_1 računat iz R_m slagati sa grafikom za balk koji po sastavu odgovara datom filmu, i reflektanca maksimuma će odgovarati reflektanci nepokrivene podloge. Ovo ponašanje je ilustrovano na slici 2.3. za MgF₂ naparenog na staklu. Suprotno tome je ponašanje CaF₂ dobijenog vakuumskim isparavanjem (ne posebno visokog stepena), koje je demonstrirano krivom na slici 2.4.. U ovom slučaju, dobijeno ponašanje može biti izračunato uzimanjem gradijenta indeksa refrakcije normalno na ravan filma.



Slika 2.3. Reflektanca filma MgF₂



Slika 2.4. Reflektanca filma CaF₂

2.1.2. <u>Apsorpcija</u>

Ako materijal filma apsorbuje, potrebne su neke modifikacije izraza (2.1., 2.2., 2.3., 2.4., 2.5.). U transparentnoj sredini, forma prostiranja svetlosti je takva da ravan konstantne faze leži paralelno sa ravni konstantne amplitude. Za izotropne sredine, ove ravni su normalne na pravac prostiranja svetlosti. U apsorbujućim sredinama, svetlost koja pada na film pod izvesnim uglom se prostire sa ravnima konstantne amplitude nagnutim ravnima sa konstantnom fazom, što je opisano kao nehomogeni talas. Matematički opis je komplikovan, pa je generalno, dovoljno proučavati apsorpciju filmova ili transmisijom ili u refleksiji, u slučaju kada svetlost pada normalno na film. U pređašnjem slučaju opis je jednostavan, s obzirom da su u ovom specijalnom slučaju ravni konstantne faze paralelne onima sa konstantnom amplitudom. U poslednjem slučaju je ispitano homogeno reflektovano zračenje.

Za talas koji pada normalno na apsorbujuću podlogu, prostiranje talasa može biti opisano kompleksnim indeksom $(n_1 - ik_1)$. Oblik talasa za prostiranje u z pravcu, dakle, može biti zapisan kao:

$$\exp 2\pi i \left[\nu t - \left(n_1 - ik_1 \right) \frac{z}{\lambda_{\nu}} \right] = \exp \left(\frac{-2\pi k_1}{\lambda_{\nu}} \right) \exp 2\pi i \nu \left(t - \frac{n_1 z}{c} \right)$$
(2.6.)

gde je λ_{ν} talasna dužina zračenja u vakuumu. Fizičko značenje veličine k_1 je sledeće: za određenu dužinu puta koja je jednaka jednoj talasnoj dužini u vakuumu, atenuacija je $e^{-2\pi k_1}$. Izrazi za reflektancu i transmitancu apsorbujućih filmova se dobijaju zamenom $n_1 - ik_1$ umesto n_1 u izrazu za Frenelove koeficijente, izvodeći sumiranje i procenjujući kvadrat modula rezultujućih amplituda. Razlika između spektrofotometrijskih krivih za transparentne i apsorbujuće filmove je ilustrovana za Sb₂S₃ na slici 2.5.. Na visokim frekvencijama film apsorbuje i kriva je slična krivoj sa slike 2.2.. U regionu apsorpcione granice, film postaje apsorbujući i kriva transmitance počinje da opada.



Slika 2.5. Transmitanca filma Sb₂S₃

Jasno je da će, ako je apsorpcioni koeficijent materijala filma dovoljno velik, efekti višestruke refleksije biti zanemarljivi i kriva transmisije će monotono opadati sa porastom debljine. Ovo ponašanje

je ispoljeno kod metalnih filmova u vidljivoj oblasti: vrednost k_1 je toliko visoka da je transmitanca filma debljine 100 nm generalno manja od 1%. (U dalekoj UV oblasti, međutim, na frekvencijama koje prevazilaze frekvencije elektrona u plazmi, metalni filmovi mogu ispoljiti skoro transparentno ponašanje).

2.1.3. Optičke konstante filmova

<u>Transparentni filmovi</u>

Indeksi refrakcije filmova mogu biti određeni sa spektro-fotometrijskih krivih. Inače, može biti upotrebljen jednostavan metod, koji je uveo Abeles /8/. Ako električni vektor upadnog zraka paralelan sa ravni upadanja, pada na delimično prekrivenu površinu pod upadnim uglom $\phi_B = arctgn_F$, tada su reflektance filma i podloge na koju nije nanet film međusobno jednake. Dodatna sočiva u teleskopu na običnom spektrometru omogućavaju da linija razgraničenja na ivici filma može biti jasno viđena i da poklapanje intenziteta može biti ostvareno. Reflektanca jednakih položaja je nezavisna od indeksa refrakcije podloge. Položaj je takođe nezavisan od debljine filma, s tim da je za određene debljine, razgraničenje malo (slika 2.6.).



Slika 2.6. Zavisnost reflektance podloge od upadnog ugla

U nekim slučajevima, kompaktne filmske forme imaju indekse refrakcije jednake sa indeksima refrakcije balk materijala. Magnezijum florid je dobar primer takvih materijala, iako pokazuje nešto viši rast od onog koji daje mineral MgF₂, verovatno zbog sadržaja CaF₂. U drugim slučajevima, indeksi refrakcije su znatno niži od onih za balk, usled forme nagomilane strukture koja sadrži šupljine. Merenja indeksa refrakcije na ovakvim filmovima, omogućavaju da bude određena veličina šupljina. Nađeno je da poroznost filmova, kakav je litijum fluorid, često zavisi od debljine filma, usled rasta različito orijentisanih kristalića u tankim filmovima.

Precizna merenja reflektujućih i transparentnih osobina filmova, čiji su indeksi refrakcije manji od vrednosti za balk, generalno pokazuju da oni ne mogu biti reprezentovani kao makroskopski jednaki slojevi. S obzirom da je razvoj jako preciznih metoda donekle komplikovan, osnovne karakteristike, kao što je gradijent indeksa refrakcije, mogu biti izvedene. Tako CaF₂ film može biti napravljen da daje dovoljno nizak indeks refrakcije, koji bi zadovoljavao uslov $n_F = \sqrt{n_g}$ (gde je n_g indeks stakla), čime se obezbeđuje potpuna antirefleksija za, recimo, zelenu oblast spektra. Ovo je ostvareno isparavanjem u slabom vakuumu. Transparentni dielektrični filmovi imaju važan udeo u ostvarivanju višeslojnih optičkih sistema zbog niza bitnih osobina. Oblast talasnih dužina u kojoj oni mogu biti korišćeni je ograničena apsorpcijom u filmovima. Ultraljubičasta granica za ovakve sisteme je oko 250 nm. U infracrvenoj oblasti, granica je generalno određena činjenicom da stabilni slojevi velikih debljina ne mogu biti napravljeni.

• Apsorbujući filmovi

Određivanje dveju optičkih konstanti apsorbujućih izotropnih filmova je ponekad mnogo komplikovanije nego li određivanje indeksa refrakcije transparentnih filmova.

Ako imamo nekoliko filmova različite debljine i ako su te debljine određene nezavisno, tada njihova upotreba može biti zasnovana na činjenici da je za debljine, dovoljno velike da bi se zanemarila višestruka refleksija, transmitanca filma data kao:

$$T = \frac{16n_0n_2(n_1^2 + k_1^2)^2}{\left[\left(n_1 + n_2\right)^2 + k_1^2\right] \cdot \left[\left(n_0 + n_1\right)^2 + k_1^2\right]} \exp\left(-4\pi v k_1 d_1\right)$$
(2.7.)

Grafik zavisnosti lnT od debljine daje ravnu liniju nagiba iz koga se može odrediti vrednost k.

Merenje koeficijenta refleksije za debele filmove ($T \approx 0$) omogućava da se odredi indeks prelamanja preko merene reflektance i vrednosti za k, s obzirom da je za slučaj kada svetlost pada normalno na film:

$$R = \frac{\left(n_1 - n_0\right)^2 + k_1^2}{\left(n_1 + n_0\right)^2 + k_1^2}$$
(2.8.)

Ako ispitivani film leži na transparentnoj podlozi, tako da reflektanca R' podloge može biti izmerena, ovo zajedno sa transmitancom T i reflektancom R na strani koja se graniči sa vazduhom, omogućava da optičke konstante i debljina budu određene (potrebno je napomenuti da iako transmitanca ne zavisi od pravca upadnog zraka, reflektanca zavisi od indeksa refrakcije sredine sa kojom se graniči).

Jedna od najosetljivijih metoda za optička merenja je upotreba polarimetra. Amplituda koeficijenta refleksije za zrak koji upada pod datim uglom na površinu (ili film) zavisi od stepena polarizacije. Razmatrajući upadni zrak preko p- i s- komponenti (jednačine 2.1. i 2.2.), vrednosti za R_p i R_s će se razlikovati. Kako promena faze sa refleksijom takođe zavisi od stepena polarizacije, to u opštem znači da je zrak, koji je polarisan električnim vektorom normalnim na ravan upadanja, reflektovan u stanju eliptičke polarizacije. Analiza eliptičnosti reflektovanog zraka može dovesti do procene optičkih konstanti površine ili filma. Ako se prvo razmatra površina, nalazi se da je uslov koji optičke konstante moraju zadovoljavati: $n^2+k^2\gg1$. Ovaj uslov zadovoljava većina metala u vidljivoj oblasti. U opsegu gornje aproksimacije optičke konstante su dovedene u vezu sa upadnim uglom θ (upadni ugao za koji reflektujuća elipsa ima veliku i malu osu, od kojih je jedna paralelna, a druga normalna na ravan upadanja) i azimutalnim uglom ψ (ugao između ravni upadanja i pravca rezultujućeg zraka). Pod ovim uslovima, n i k su date kao:

$$n = tg\theta\sin\theta\cos2\psi$$

$$k = tg2\psi$$
(2.9.)

Ova metoda može biti primenjena na veoma debeo film. Za tanak film, stanje polarizacije reflektovane svetlosti može biti određeno iz jednačine (2.2.), ali iz jednačina (2.1. i 2.2.) (za s- i p-

komponente) ne mogu se eksplicitno izraziti n i k preko merenih θ i ψ . Izračunavanje vrednosti θ i ψ za dati niz vrednosti n, k i debljine je donekle komplikovano. Inače, može se koristiti komparator tako da se meri diferencijalna fazna razlika pri refleksiji na površini, što sa azimutom konstituiše dva merena parametra. Debljina se meri nezavisno.



Slika 2.7. Zavisnost diferencijalne fazne razlike od azimutalnog ugla za Si-filmove Indeksi prelamanja filma su podvučeni, a fazna debljina δ u stepenima je označena na svakoj krivoj. Debljina filma je 1.517 $\delta/(n^2-0.883)^{1/2}$ nm.

Slika 2.7. pokazuje tipičnu krivu za Si filmove.Krive za različite debljine se ne ukrštaju, tako da se merenjem ψ , Δ i debljine mogu odrediti n i k.

Međutim, dobijeni rezultati značajno su zavisili od metode pripreme površine uzorka, jer je vrednost za k kod metala takva da je prodiranje upadnog zraka ograničeno do na prvih 100 nm. Metod isparavanja u vakuumu je otklonio ovaj problem.Naime, ovom metodom, površine stakla mogu biti napravljene sa visokim stepenom uglačanosti, te mogu poslužiti kao podloge, a filmovi mogu biti nataloženi u vakuumu tako da dobijamo uglačane, tanke slojeve čistog metala, što je idealno za ovaj tip merenja. Sa pojavom elektronske mikroskopije otkriveno je da su filmovi skupina mikrokristala prečnika reda nm ili desetina nm. Primena elektromagnetne teorije na ovakve sisteme je pokazala da optičko ponašanje jako zavisi od veličine i oblika kristala. Ovo je očigledno ako pretpostavimo da čestice iz kojih se sastoji film imaju jednake optičke konstante sa onim koje odgovaraju balku. Za kristale čije su dimenzije manje od dužine slobodnog puta elektrona, optičko ponašanje biće drugačije od onog za balk. Usled rasejanja elektrona na česticama filma, provodljivost, pa time i koeficijent ekstincije, biće modifikovani u odnosu na balk vrednosti.

2.1.3. Nehomogeni filmovi

Sedamdesetih godina 20-tog veka porastao je interes za filmovima koji su okarakterisani varijacijom indeksa prelamanja (refrakcije) u pravcu normalnom na ravan filma. Ovakvi filmovi mogu biti napravljeni simultanim isparavanjem iz dva izvora, kontrolisanim na različitim brzinama. Akora

stepen taloženja komponente A (indeksa n_A) linearno menja sa vremenom od 0 do R_A , dok se za to isto vreme stepen taloženja komponente B (indeksa n_B) menja od R_B do 0, indeks refrakcije će se menjati sa pravcem z u filmu prema relaciji:

$$n^{2}(z) = \frac{n_{A}^{2} - \alpha n_{B}^{2}}{1 - \alpha} + \frac{\alpha (n_{B}^{2} - n_{A}^{2})}{(1 - \alpha) [1 + (\alpha^{2} - 1)z/d]^{\frac{1}{2}}}$$
(2.10.)

gde je $\alpha = R_B/R_A$, d-debljina filma.

Optičko ponašanje nehomogenih filmova se može proceniti tretirajući ga kao veliki broj subslojeva i primenjujući teoriju multislojeva. Za proizvoljan slučaj, ovo je gotovo jedini lak metod.

Za određene specifične slučajeve, međutim, talasna jednačina može biti eksplicitno rešena. Za slučaj gde je $R_A/R_B = 1$, izraz za električno i magnetno polje u sloju je:

$$E = A\xi^{1/2} J_{1/3} (2kd\xi^{3/2} / a) + B\xi^{1/2} J_{-\frac{1}{3}} (2kd\xi^{\frac{3}{2}} / a)$$

$$H = -\frac{1}{iz_0} \left[A\xi J_{-\frac{2}{3}} (2kd\xi^{\frac{3}{2}} / a) - B\xi J_{\frac{2}{3}} (2kd\xi^{\frac{3}{2}} / a) \right]$$

$$\xi = az/d + n_A^2 \qquad (2.11.)$$

$$a = n_0^2 - n_A^2$$

$$Z_0 = \sqrt{(\mu_0/\varepsilon_0)}$$

A,B-poznate konstante, uključujući brzine R_A i R_B .



Slika 2.8. Krive konstantne reflektance za različite R_A/R_B i n_s

Reflektanca jednoslojnog nehomogenog filma, ostvarena pod gornjim uslovima, je funkcija odnosa R_A/R_B i indeksa refrakcije podloge. Slika 2.8. prikazuje krivu konstantne reflektance za parametre R_A/R_B i indeks podloge n_s . Za ovaj dijagram, indeksi refrakcije konstituenata su uzeti kao $n_A = 1.35$, $n_B = 2.35$. Interesantno je da postoji značajna oblast dijagrama R_A/R_B , n_s za koji je vrednost reflektance ispod 0.5%. Ovo inicira da je za odgovarajući raspon indeksa podloge i odnos brzina isparavanja, dostižna niska reflektanca. Ova činjenica je od interesa, posebno što ukazuje da veoma tačna kontrola brzine isparavanja nije bitna.

2.2. VIŠESLOJNI SISTEMI

2.2.1. Teorijske postavke

U drugoj polovini 20-tog veka, razvoj višeslojnih sistema filmova je zauzeo značajno mesto, tako što je imao veliki uticaj na mnoge oblasti optike. Velika pažnja pridavana je sistemima sa planparalelnim stranama, transparentnim, homogenim slojevima i sa debljinom reda veličine talasne dužine upotrebljenog zračenja. (filmovi dobijeni isparavanjem se koriste za optičku oblast, ploče od plastike za mikrotalasnu oblast).

Izvođenje izraza za reflektancu i transmitancu slojevitih sistema je jednostavno. Uobičajeni elektromagnetni granični uslovi su primenjeni na svaki sloj tako da amplituda talasa (u oba smera) u svakom sloju može biti zapisana preko amplituda okolnih slojeva. Prema tome, sukcesivnim operacijama, amplituda talasa koji se javljaju sa bilo koje strane sistema može biti izražena preko svojstvenog talasa. Konačni rezultati su odmah izraženi u obliku proizvoda matrica 2×2 . Postoje dve moguće metode rešavanja problema. U jednom slučaju, svaka matrica je funkcija Frenelovih koeficijenata na granici između slojeva i debljine susednog filma. U drugom slučaju, svaka matrica je funkcija debljine filma i indeksa prelamanja.

U prvom slučaju radi se o sistemu prikazanom na slici 2.9..



Slika 2.9. Višeslojni sistem

$$\left(\frac{E_0^{+}}{E_0^{-}}\right) = \frac{\prod_{\nu=1}^{N+1} M_{\nu}}{\prod_{\nu=1}^{N+1} t_{\nu}} \left(\frac{E_{N+1}^{+}}{E_{N+1}^{-}}\right)$$
(2.12.)

gde je t_{ν} Frenelov transmisioni koeficijent za spoj između ν -tog i $(\nu + 1)$ -tog sloja. Matrica M je data kao:

$$M_{\nu} = \begin{pmatrix} \exp i\delta_{\nu-1} & r_{\nu} \exp i\delta_{\nu-1} \\ r_{\nu} \exp(-i\delta_{\nu-1}) & \exp(-i\delta_{\nu-1}) \end{pmatrix}$$
(2.13.)

 δ_{ν} je fazna debljina ν -tog sloja, a r_{ν} je Frenelov refleksioni koeficijent na $\nu / \nu + 1$ granici.

Ako svetlost upada sa n_0 strane, imamo da je $E_{N+1}^{-} = 0$ i amplitude reflektance E_0^{-}/E_0^{+} i transmitance E_N^{+}/E_0^{+} se lako nalaze:

$$R = \frac{m_{21}}{m_{11}} \qquad T = \frac{\prod_{\nu=1}^{N+1} t_{\nu}}{m_{11}} \qquad (2.14.)$$

gde su m_{11} i m_{21} elementi proizvoda matrica:

$$\prod_{\nu=1}^{N+1} M_{\nu} = \begin{pmatrix} m_{11} & m_{12} \\ m_{21} & m_{22} \end{pmatrix}$$
(2.15.)

Koeficijenti refleksije i transmisije su dati kao:

$$\mathbf{R} = RR^*$$
 $\mathbf{T} = \frac{n_{N+1}}{n_0}TT^*$ (2.16.)

Alternativni metod izvođenja je takav da treba raditi sa ukupnim komponentama polja $E_v = E_v^+ + E_v^-$, $H_v = H_v^+ + H_v^-$ u slojevima, pa tada razmatrane relacije postaju:

$$\begin{pmatrix} E_{\nu+1} \\ H_{\nu+1} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \cos \delta_{\nu} & (i \sin \delta_{\nu}) / n_{\nu} \\ i n_{\nu} \sin \delta_{\nu} & \cos \delta_{\nu} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} E_{\nu} \\ H_{\nu} \end{pmatrix}$$
(2.17.)

Iz graničnih uslova na spoju n_0 / n_1 sledi $E_{\nu+1} = E_{\nu+1}^+$ i $H_{\nu+1} = n_{\nu+1}E_{\nu+1}^+$. Sukcesivnom primenom jednačine (2.17.) dobija se neophodna veza između $E_{\nu+1}^+$ i E_0^+, E_0^- , tako da reflektanca i transmitanca mogu biti određene.

2.2.2. Tipični višeslojni sistemi

Jedan od najznačajnijih višeslojnih sistema je onaj sa visokoreflektujućim slojevima, jednake optičke debljine i sa naizmeničnim indeksom prelamanja. Za talasnu dužinu λ_0 za koju je debljina sloja neparni umnožak λ_0 / 4, svi višestruko reflektovani zraci su u fazi. Sistem ima visoku refleksiju na λ_0 i, za veliki broj slojeva, ima gladak vrh. Širina trake reflektance je data kao:

$$\frac{\Delta v_0}{v_0} = \frac{4}{\pi} \arcsin \frac{n_H - n_L}{n_H + n_L}$$
(2.18.)

a reflektanca na v_0 je data kao:

$$\mathbf{R}_{2N} = \left(\frac{n_s f - n_0}{n_s f + n_0}\right)^2 \tag{2.19.}$$

za svaki paran broj slojeva, i

$$\mathbf{R}_{2N+1} = \left(\frac{fn_{H}^{2} - n_{0}n_{s}}{fn_{H}^{2} + n_{0}n_{s}}\right)^{2}$$
(2.20.)

za svaki neparan broj slojeva, gde je n_0 indeks refrakcije upadne sredine, n_s je indeks podloge, a $f = (n_H/n_L)^{2N}$.



Slika 2.10. Traka reflektance za debljinu sloja $d = \frac{3}{4}$

Za relativno mali broj slojeva tipičnog dielektričnog materijala filma, trebalo bi da se dostigne veoma visoka reflektanca. Prema tome, uzimajući $n_H = 2.42$ i $n_L = 1.38$, nađeno je da se za 15 slojeva dobija R= 0.9996. U praksi, tendencija refleksije ne prevazilazi teoretske vrednosti, s obzirom da se javljaju razni gubici u nehomogenim i nataloženim slojevima. Bez obzira na to, reflektanca u ovim sistemima iznosi obično 99%.

Dostupnost visokouspešne refleksije automatski dovodi do mogućnosti pravljenja uskotrakastih transmisionih filtera Fabry-Perot tipa, gde je polutalasni sloj usendvičen između visokoreflektujućih komora. Ovakvi filteri su obostrano pravljeni sa srebrom kao reflektorom. Međutim, visoki apsorpcioni gubici u srebrnim slojevima dovode do toga da ovi filteri imaju nizak vrh transparencije.

Transmitanca sistema koji se sastoji od sloja uklještenog između dva reflektujuća sloja, čija reflektanca zavisi od talasne dužine je poznata kao Ajri kriva /9/. S obzirom da reflektanca dielektričnih komora pada na niže vrednosti na ivici trake refleksije, dobija se nešto drugačija kriva transmisije-slika 2.11.



Slika 2.11. Transmitanca dielektričnog filtera Fabry-Perot tipa

Slobodna spektralna oblast je, bez obzira na to, u praksi dovoljno velika za ove filtere da bi bila od značaja. Širina trake manje od 1 nm se može dobiti, sa pikom transmitance iznad 80% ili slično.



Slika 2.12. Dvostruki polutalasni sistem

Slika 2.13. Trostruki polutalasni sistem

U nekim slučajevima, Fabry-Perot sistem nije najbolji za izvođenje uskotrakastih filtera. Upotreba višestrukih polutalasnih slojeva kao što su oni na slici 2.12. i 2.13., dovodi do više pravilnih pikova traka. Tačna forma krive transmitance je manje osetljiva na rasturanje grešaka u debljini slojeva nego kod filtera Fabry-Perot tipa. Još jedna bitna činjenica svih dielektričnih sistema je ograničavanje reflektance na spoju dielektrik-vazduh. Jednostruki sloj optičke debljine $\lambda_0 / 4$ i indeksa refrakcije $\sqrt{n_s}$ će redukovati na nulu reflektancu na površini indeksa n_s i talasne dužine λ_0 . Međutim, za talasne dužine u okolini $\lambda_0/2$, reflektanca površine je praktično ista kao i reflektanca same podloge. Alternativa je uzeti odgovarajući broj komora dielektričnih filmova, napravljenih da daju seriju nula i nizak prosek refleksije duž širokog područja talasnih dužina. Slika 2.14. pokazuje šta može biti postignuto sa četveroslojnim sistemom. Reflektanca duž celog vidljivog spektra je ispod 0.5%.



Slika 2.14. Četvoroslojni antireflektujući sistem

3. <u>DISPERZIJA INDEKSA PRELAMANJA</u>

3.1. ZAKON REFRAKCIJE

Optička stakla se koriste za transmisiju vidljive svetlosti, uključujući i okolne spektralne oblasti. Optički sistemi koriste optička stakla za skretanje zraka svetlosti, emitovanih iz tačkastog izvora, na ravan posmatranog objekta.

Ako svetlost pada na neapsorbujući materijal, na graničnoj površini imamo pojavu refleksije i refrakcije. Indeks prelamanja (refrakcije) je dat kao odnos brzine svetlosti u vakuumu i brzine u datoj sredini:

$$n = \frac{c}{v} \tag{3.1.}$$

Odnos indeksa u sredinama 1 i 2 se naziva relativni indeks refrakcije. Bitan specijalan slučaj je indeks refrakcije n_{rel} , definisan izrazom:

$$n_{rel} = \frac{n_{stakla}}{n_{vazduha}}$$
(3.2.)

Pojava refrakcije upadnog zraka svetlosti na graničnoj površini, opisana je Snelovim zakonom /10/, čija je vektorska forma:

$$\vec{s} \times \vec{o} = \vec{s}' \times \vec{o} \tag{3.3.}$$

 \vec{s} i \vec{s}' su vektori kosinusa pravca upadnog i refraktovanog zraka i dužinama korespodentnim sa indeksom refrakcije u sredinama 1 i 2 (slika 3.1.).



Slika 3.1. Refrakcija na površini između dve optičke sredine

Vektor \vec{o} je jedinični vektor u pravcu normalnom na površinu. Formulacija izražena preko vektorskog proizvoda vektora, automatski uzima u obzir da su upadni zrak, reflektovani zrak i vektor normale komplanarni.

Dalje će se razmatrati optička stakla kao homogeni i izotropni optički materijali sa visokom svetlosnom transparentnošću za oblast talasnih dužina koja se posmatra.

3.2. <u>OSNOVNA TEORIJA DISPERZIJE</u>

Uopšte, indeks refrakcije, pa prema tome, i brzina faze u sredini, zavise od talasne dužine. Ova pojava se naziva *disperzija*.

Disperzija se naziva normalnom ako indeks refrakcije raste sa kraćim talasnim dužinama. U suprotnom, imamo anomalnu disperziju. Za staklo, normalna disperzija je prisutna daleko od apsorpcione granice, dok je anomalna prisutna u blizini apsorpcione granice (slika 3.2.).



Slika 3.2. Apsorpcija i disperzija svetlosti u dielektričnoj sredini na rezonantnoj talasnoj dužini λ_{res}

U principu, kvantno-mehanička teorija disperzije bi trebala biti uzeta u obzir, ali je i klasična elektromagnetna teorija dovoljno uspešna. Promena indeksa refrakcije sa talasnom dužinom λ ili frekvencijom ν može biti objašnjena primenom elektromagnetne teorije na molekulsku strukturu materije. Odgovarajuće disperzione krive koje se u tom slučaju mogu pojaviti, predstavljene su na slici 3.3. Ako elektromagnetni talas pada na atom ili molekul, tada elektroni iz poslednje ljuske vibriraju na frekvenciji upadnog talasa i imaju rezonancu na talasnoj dužini λ_j . Za jednog od njih može se napisati sledeća disperziona relacija, koja se odnosi na sredinu niske optičke gustine:

$$u^{2} - 1 = (n - ik)^{2} = \frac{Ne^{2}}{2\pi c \varepsilon_{0} m} \sum_{i} \frac{f_{j} \lambda^{2} \lambda^{2}_{j}}{2\pi c (\lambda^{2} - \lambda_{j}^{2}) + i\gamma_{j} \lambda_{j}^{2} \lambda}$$
(3.4.)

u – kompleksni indeks refrakcije u vakuumu

n – realni deo

k – imaginarni deo

N – broj molekula u jedinici zapremine

f – jačina oscilatora na rezonantnoj talasnoj dužini λ_i

 γ – konstanta prigušenja

m i e – masa i naelektrisanje elektrona

Konstanta f_j određuje jačinu apsorpcije, a konstanta γ_j se može tumačiti kao konstanta prigušenja sile na rezonantnoj talasnoj dužini. n i k se nazivaju optičkim konstantama. U oblastima zanemarljive apsorpcije, daleko od rezonance, k = 0, pa imamo redukovanje formule:

$$n^{2} - 1 = \frac{Ne^{2}}{4\pi^{2}c^{2}\varepsilon_{0}m} \sum_{j} \frac{f_{j}\lambda_{j}^{2}\lambda^{2}}{\lambda^{2} - \lambda_{j}^{2}}$$

$$A_{j} = Ne^{2}f_{j}\lambda_{j} / 4\pi^{2}c^{2}\varepsilon_{0}m \Rightarrow n^{2} - 1 = \sum_{j} \frac{A_{j}\lambda^{2}}{\lambda^{2} - \lambda_{j}^{2}}$$

$$\stackrel{h}{=} \int_{1.5}^{1.5} \int_{1.5}^{1.$$



] (d)

2.0

1.0

U optički gustim sredinama, gde interakcija atoma sa efektivnim električnim poljem ne može biti zanemarena, izraz $n^2 - 1$ može biti zamenjen sa $\frac{n^2 - 1}{n^2 + 2}$ prema Lorentz-u i Lorentz-u /11/:

$$\frac{n^2 - 1}{n^2 + 2} = \sum_{i} \frac{A_i^2 \lambda^2}{\lambda^2 - \lambda_i^2}$$
(3.6.)

Kramers i Kronig /12/ su pokazali, da pod veoma opštim uslovima, veza između realnog dela R_e i imaginarnog dela I_m, kompleksne funkcije $F(\tilde{\nu}) = R_e(\tilde{\nu}) - iI_m(\tilde{\nu})$ može biti izvedena na sledeći način:

$$R_{e}\left(\tilde{\nu}\right) = \frac{2}{\pi} \int_{0}^{\infty} \frac{\tilde{\nu}' I_{m}\left(\tilde{\nu}\right)}{\tilde{\nu}'^{2} - \tilde{\nu}^{2}} d\tilde{\nu}'$$
(3.7.)

gde je $\tilde{\nu} = \frac{\omega}{c} = \frac{2\pi}{\lambda}$ -talasni broj Funkcije koje određuju ovu vezu su:

ի 2.0

1,5

1.0

$$F(\widetilde{\nu}) = N(\widetilde{\nu}) - 1 = \underbrace{n(\widetilde{\nu}) - 1}_{R_{\varepsilon}(\widetilde{\nu})} - \underbrace{ik(\widetilde{\nu})}_{I_{m}(\widetilde{\nu})}$$
(3.8.)

$$F(\widetilde{\nu}) = \varepsilon - 1 = N^{2}(\widetilde{\nu}) - 1 = \underbrace{n^{2}(\widetilde{\nu}) - k^{2}(\widetilde{\nu}) - 1}_{R_{\varepsilon}(\widetilde{\nu})} - \underbrace{i2n(\widetilde{\nu})k(\widetilde{\nu})}_{I_{m}(\widetilde{\nu})}$$
(3.9.)

ε označava kompleksnu dielektričnu funkciju, a N je kompleksni indeks refrakcije.

U literaturi je zastupljena forma jednačine (3.9.). Međutim, i jednačina (3.8.) je isto toliko primenjiva kao i jednačina (3.9.), za razna analitička razmatranja. Prema tome, može se pisati:

$$n^{2} - 1 = \sum_{j} \frac{A_{j}^{2} \lambda^{2}}{\lambda^{2} - \lambda_{j}^{2}}$$
(3.10.)

3.3. <u>REALNE DISPERZIONE KRIVE ZA STAKLA</u>

Disperzione krive na slikama 3.2. i 3.3. pokazuju promenu n i k za slučaj jednorezonantnog modela. U realnosti, pojava rezonance je mnogo kompleksnija. Ovo je demonstrirano na slici 3.4., na kojoj su prikazane merene vrednosti optičkih konstanti za SiO₂ staklo. Čak i ovaj jednostavan sastav ima tri glavne apsorpcione trake (jednu u UV oblasti na 0.1 μm i dve u IC oblasti na 9 i 21 μm) sa finom strukturom. Da bi se definisala promena n sa λ u obliku disperzione formule, potrebno je odrediti efektivnu rezonantnu talasnu dužinu.

Krive disperzije optičkih stakala su određene brojem, pozicijom i jačinom apsorpcione granice komponenti stakla i njegove strukture. U okviru granica koje nameće izrada optičkih stakala, mogu se menjati ove osobine da bi se dobile željene krive disperzije.



Slika 3.4. Optičke konstante za SiO₂ staklo

Vrlo često je potrebno znati indeks refrakcije na neizmerenim talasnim dužinama. Analitička reprezentacija promene je takođe potrebna za proračune tokom izrađivačkog procesa optičkog sistema. Mnogi naučnici su pokušali da izvedu disperzionu formulu na taj način što bi računali indeks refrakcije sa par konstanti izvedenih iz merenja. Formula bi trebala pokriti celo upotrebljivo područje stakla (od UV apsorpcione ivice do IC) i biti precizna koliko je to potrebno (četiri decimalna mesta za optičke potrebe tokom dizajna, 5 ili 6 decimalnih mesta za preciznu interpolaciju merenih tačaka) kao i jednostavna koliko je to moguće. Iz analitičkih razloga, bilo bi poželjno ako bi *n* bilo izraženo u formi $n = \sum a_i \lambda^j$.

Postoji dosta disperzionih formula koje zadovoljavaju ove potrebe sa različitom preciznošću. Ali, one su primenljive samo u optičkom području gde je apsorpcija zanemarljiva.

Pritom treba istaći da ekstrapolacija podataka za n van merenih talasnih dužina, korišćenjem disperzione formule, dovodi do ozbiljnih grešaka.

3.4. NEKI TEORIJSKI MODELI DISPERZIJE INDEKSA PRELAMANJA

3.4.1. Cauchy-eva disperziona formula

Cauchy /13/ je prvi bio uspešan u opisivanju normalne disperzije u algebarskom obliku. Jednačina je oblika:

$$n = a + \frac{b}{\lambda^2} + \frac{c}{\lambda^4}$$
(3.11.)

Njena tačnost u vidljivom delu spektra je reda 10 .

3.4.2. Hartmann-ova disperziona formula

Disperziona formula Hartmann-a je primenjiva u vidljivoj oblasti, a data je u sledećem obliku:

$$n = n_0 + \frac{A}{\left(\lambda - \lambda_0\right)^B}$$
(3.12.)

Konstante A, B, n_0 i λ_0 moraju biti empirijski izvedene. Eksponent B varira između 0.5 i 2, ali može biti zamenjen jedinicom u većini slučajeva. Tačnost formule je reda 10^{-3} - 10^{-4} .

3.4.3. Sellmeier-ova disperziona formula

Sellmeier-ova /14/ disperziona formula glasi:

$$n^{2} = 1 + \sum_{j=1}^{N} \frac{a_{j} \lambda^{2}}{\lambda^{2} - \lambda_{j}^{2}}$$
(3.13.)

 λ_j označava efektivnu rezonantnu talasnu dužinu. Može se pokazati da praktično sve disperzione krive optičkih stakala mogu biti izražene korišćenjem dve efektivne talasne dužine: jedne u UV oblasti (tipično u oblasti 50-150 nm) i jedne u IC oblasti (7-10 µm). Glavna prednost Sellmeier-ove disperzione formule je da je zasnovana na fizičkom razmišljanju i prema tome ima odlične osobine primene za proces redukcije podataka merenih n. Greške interpolacije su minimalne, a čak i greške ekstrapolacije su znatno manje nego u Lorentz-ovoj formuli. 1992. godine, Sellmeier formula sastavljena iz tri efektivne rezonantne talasne dužine je prihvaćena kao standardna disperziona formula za Schott-ov katalog optičkih stakala /15/.

3.4.4. Helmholtz-Keteller-Drude-ova disperziona formula

Helmholtz-Ketteler-Drude-ova disperziona formula /16,17/ je modifikacija Sellmeier disperzione formule:

$$n^{2} = a_{0} + \sum_{j=1}^{N} \frac{a_{j}}{\lambda^{2} - \lambda^{2}_{j}}$$
(3.14.)

 λ_j su efektivne rezonantne talasne dužine oscilatora. Tačnost koja se očekuje treba da je uporediva sa tačnošću Sellmeier-ove formule.

3.4.5. Schott-ova disperziona formula

Ova disperziona formula koja daje tačnost do na 5 ili 6 decimalnih mesta je predložena od strane Schott-a /18/ 1966.godine kao izuzetno primenljiva za optička stakla. Može biti izvedena povećavanjem konačnog reda Sellmeier-ove disperzione formule sa proizvoljnim brojem efektivnih rezonantnih talasnih dužina. λ^2 termovi polaze od IC apsorcione linije, a λ^{-j} termovi od UV apsorcionih granica.

$$n^{2} = A_{0} + A_{1}\lambda^{2} + A_{2}\lambda^{-2} + A_{3}\lambda^{-4} + A_{4}\lambda^{-6} + A_{5}\lambda^{-8}$$
(3.15.)

Konstante A_i se određuju najmanje kvadratnim fitovanjem merenih indeksa refrakcije. Tačnost ove disperzione formule za određene spektralne oblasti je:

```
400 nm \leq \lambda \leq 750 nm

\pm 3 \times 10^{-6}

355 nm \leq \lambda \leq 400 nm

750 nm \leq \lambda \leq 1014 nm

\pm 6 \times 10^{-6}
```

S obzirom da formula uzima u obzir proizvoljan broj efektivnih rezonantnih talasnih dužina, interpolaciona tačnost između izmerenih indeksa refrekcije je ponekad manja nego kod Sellmeier-ove disperzione formule. Primenjivost ove disperzione formule može biti povećana dodavanjem λ^{-10} terma u UV oblasti i dodavanjem λ^4 i viših u IC oblasti.

3.4.6. Herzberger-ova disperziona formula

Analitičkom studijom, Herzberg /19/ je došao do zaključka da u vidljivoj oblasti većina optičkih stakala može biti opisana sa četiri parametra:

$$n = A_0 + A_1 \lambda^2 + \frac{A_2}{\left(\lambda^2 - \lambda_0^2\right)^2}$$
(3.16.)

sa $\lambda_0 = 168 \text{ nm}$.

Disperziona formula je tačna do na četiri decimalna mesta u vidljivoj spektralnoj oblasti.

3.4.7. Geffcken-ova disperziona formula

Geffcken /20, 21, 22/ je nastojao da izrazi zavisnost indeksa refrakcije od talasne dužine kao kombinaciju funkcije koja opisuje spektralno ponašanje tzv. normalnih stakala i δ funkcije koja se odnosi na anomalnu disperziju specifičnih stakala. Po definiciji, δ -funkcija je jednaka nuli za normalna stakla.

$$n(\lambda) = 1 + [1 - D(\lambda)][n(\lambda_1) - 1] + B(\lambda)[n(\lambda_2) - n(\lambda_1)] + D(\lambda)\delta(\lambda)$$
(3.17.)

U ovom izrazu λ_1 i λ_2 su standardne talasne dužine (λ_1 =644 nm, λ_2 =480 nm), $n(\lambda_1)$, $n(\lambda_2)$ su odgovarajući indeksi refrakcije, $B(\lambda)$ i $D(\lambda)$ su tablične funkcije za fiksiran par λ_1 i λ_2 (zavisno od tipa stakla), a δ je tabelarna funkcija koja opisuje odstupanje relativne parcijalne disperzije od ponašanja "normalnih stakala". Za oblast talasnih dužina od 365 nm do 1014 nm može se dostići tačnost reda oko 10⁻⁶.

3.4.8. Buchdahl-ova disperziona formula

Pokazalo se da je poželjno imati disperzioni model u formi $n = \sum a_j w^j$ za proizvodnju pravilno obojenih sistema sočiva. Koeficijenti a_j bi trebalo da zavise od talasne dužine, a promenljiva w bi trebala biti funkcija talasne dužine: $w = w(\lambda)$.

Nijedna od disperzionih formula pomenutih do sada ne zadovoljava ovaj uslov. Buchdahl /23/ je uveo izmenu u promenljivima, umesto talasne dužine uzeo je hromatičnu koordinatu w, definisanu sa:

$$w(\lambda) = \frac{\lambda - \lambda_0}{1 + \alpha(\lambda - \lambda_0)}$$
(3.18.)

 λ_0 je referentna talasna dužina, a α je konstanta za stakla i ima vrednost 2.5 /23/. U vidljivom delu spektra , λ_0 iznosi 587.6 nm. Indeks refrakcije sada može biti napisan kao implicitna funkcija talasne dužine izražena preko hromatične koordinate w:

$$n(w) = n_0 + v_1 w + v_2 w^2 + \dots + v_n w^n$$
(3.19.)

 n_0 je indeks refrakcije na λ_0 , a v_j odgovara disperziji stakla. Ovaj red konvergira vrlo brzo, tako da je potrebno samo par termova. Tačnost izraza po stepenima w za j = 2 i j = 3 je data kao:

j=2	$400 \text{ nm} \leq \lambda \leq 700 \text{ nm}$	$\pm 1 \times 10^{-4}$
j=3	$355 \text{ nm} \leq \lambda \leq 1014 \text{ nm}$	$\pm 2 \times 10^{-4}$

4. <u>OPTIČKE KARAKTERISTIKE JEDNOSLOJNIH I DVOSLOJNIH</u> <u>FILMOVA I BALKA HALKOGENIDA</u>

Visoke vrednosti indeksa prelamanja tankih halkogenidnih filmova praktično onemogućuju njihovo merenje klasičnim metodama.S obzirom da je debljina filmova reda veličine 1µm, u spektrima transparencije koji se mogu registrovati u vidljivom ili bliskom IC području, po pravilu se ispoljavaju interferencioni efekti. Njihova glavna karakteristika su gotovo ekvidistantni minimumi i maksimumi, na osnovu čijih vrednosti se mogu izračunati optički parametri filmova, pa i indeks prelamanja.

U ovom radu prikazani su rezultati dobijeni za tri različita filma: As_2S_3 , $Se_{60}Te_{40}$ i As_2S_3 / $Se_{60}Te_{40}$. Filmovi su dobijeni termičkim naparavanjem u vakuumu iz prethodno sintetisanog stakla. Posebno je od značaja istaći da treći tretirani film spada u grupaciju dvoslojnih sistema.

4.1. TRANSPARENTNI SPEKTRI-OSNOVNE KARAKTERISTIKE EKSPERIMENTA

Transparentni spektri su snimani u intervalu talasnih dužina od 550-1000 nm, na aparaturi koja je prikazana na slici 4.1.:



Slika 4.1. Šema uređaja za snimanje transparencije 1-izvor svetlosti, 2-kondenzorsko sočivo, 3-filter, 4-monohromator, 5-držač uzorka, 6-fotomultiplikator, 7-izvor visokog napona, 8-ampermetar

Na svom putu, svetlost najpre prolazi kroz filter da bi se izbeglo opterećenje monohromatora, a zatim i kroz monohromator, te u konačnom na film pada samo svetlost određene talasne dužine. Uloga fotomultiplikatora je da serijom dinoda multiplicira elektrone koje izbijaju nadolazeći fotoni fotoefektom na ulaznom prozoru. Tako dobijamo struju, dovoljno veliku, da bi se mogla izmeriti.Transparencija pojedinog filma je određena relativnom metodom, pri čemu je kao referentni uzorak korišćeno staklo na koje je film naparavan.

4.2. KARAKTERISTIKE TRANSPARENTNIH SPEKTARA

4.2.1. Jednoslojni tanki film As₂S₃

Eksperimentalna merenja su pokazala da se u transparentnom spektru filma As_2S_3 javlja veći broj maksimuma i minimuma. Pri radnom naponu U=1 kV, u intervalu talasnih dužina od 450-1000 nm, odnosno u intervalu energija od 1.7-2.8 eV, dobijeni su rezultati prikazani na slici 4.2.:



Slika 4.2. Transparentni spektar filma As₂S₃

S obzirom da su vrednosti maksimuma na oko 90% T, zaključujemo da je film As_2S_3 izuzetno transparentan, što se i vizuelno moglo konstatovati. Ovaj film je izrazito žute boje. Ekstrapolacijom linearnog dela matematički obrađene krive, određena je kratkotalasna granica na 474 nm. Položaji minimuma i maksimimu su dati u tabelama 1. i 2... Može se zapaziti relativno dobra ekvidistantnost ovih tačaka (Δv). U tabelama 1. i 2. su date i izračunate vrednosti za red maksimuma, odnosno minimuma. Konačno, dobijene veličine su zaokružene na ceo broj (s).

$\lambda[nm]$	$v_s[cm^{-1}]$	$\Delta v [cm^{-1}]$	$s = \frac{v_s}{v_s}$	S		
			Δv_{sr}			
718	13928	1020	11.28	11		
669	14948	976	12.10	12		
628	15924	1083	12.89	13		
588	17007	1861	13.77	14		
530	18870		15.28	15		
	$\Delta v_{sr} = 1235 \left[cm^{-1} \right]$					

TABELA 1. Maksimumi transparentnog spektra

TABELA 2.	Minimumi	transparentnog spektra
-----------	----------	------------------------

$\lambda[nm]$	$V_s[cm^{-1}]$	$\Delta v[cm^{-1}]$	$s = \frac{V_s}{\Delta V_{sr}}$	S	
694	14409	1071	11.41	11.5	
646	15480	1104	12.27	12.5	
603	16584	1053	13.14	13.5	
544	17637	1818	13.98	14.5	
514	19455		15.42	15.5	
	$\Delta v_{sr} = 1262 \left[cm^{-1} \right]$				

Kako bi se iskoristilo što više eksperimentalnih podataka, a poslednji maksimum (na 2.5 eV) nije jasno definisan, učinjena je aproksimacija, tako što je za dalju analizu procenjeno da je njegov položaj udaljen od poslednjeg maksimuma upravo za Δv_{sr} (u skladu sa stavom o ekvidistantnosti minimuma i maksimuma).

4.2.2. Jednoslojni tanki film Se₆₀Te₄₀

S obzirom da je ovaj film taman, za merenja je primenjen veći radni napon U=1.3 kV. Transparentni spektar ovog filma odlikuje se manjim brojem minimuma i maksimuma (slika 4.3.). Snimanje je vršeno u intervalu od 500-1000 nm, odnosno od 1.4-2.5 eV. Bez obzira na eksperimentalne poteškoće, rezultati su pokazali da je u oblasti merenja od 1.4 eV pa do apsorpcione granice, transparencija relativno visoka.



Slika 4.3. Transparentni spektar filma Se₆₀Te₄₀

Ekstrapolacijom linearnog dela matematički obrađene krive određena je kratkotalasna granica na 489 nm.

Očitavanjem koordinata minimuma i maksimuma i odgovarajućim proračunom, utvrđeno je da su oni približno ekvidistantni (tabele 3. i 4.)

$\lambda[nm]$	$v_s[cm^{-1}]$	$\Delta v [cm^{-1}]$	$s = \frac{v_s}{\Delta v_{sr}}$	S
821	12180	1225	9.43	9
746	13405	1151	10.38	10
687	14556	1192	11.27	11
635	15748		12.20	12
$\Delta v_{sr} = 1189 \ [cm^{-1}]$				

TABELA 3. Maksimumi transparentnog spektra Se₆₀Te₄₀

TABELA 4. Minimumi transparentnog spektra $Se_{60}Te_{40}$

$\lambda[nm]$	$v_s[cm^{-1}]$	$\Delta v[cm^{-1}]$	$s = \frac{v_s}{\Delta v_{sr}}$	S
792	12626	1224	9.78	9.5
722	13850	1558	10.73	10.5
649	15408	1398	11.93	11.5
595	16807		13.02	12.5
$\Delta v_{sr} = 1393 \ [cm^{-1}]$				

Za razliku od prethodnog uzorka, u ovom slučaju, pri određivanju reda maksimuma i minimuma, za Δv_{sr} je uzeta aritmetička sredina Δv_{srmax} i Δv_{srmin} .

4.2.3. Dvoslojni film As₂S₃ /Se₆₀Te₄₀

Vizuelno je dvoslojni film ukazivao na potrebu većeg radnog napona. Stoga su merenja u intervalu od 650-1000 nm, odnosno od 1.25-1.7 eV upadnog elektromagnetnog zračenja vršena pri naponu na fotomultiplikatoru od 1.3 kV. Pored vrlo tamne boje, ograničavajući faktor su bile i relativno male dimenzije uzoraka koji su bili na raspolaganju. Stoga su pri merenju morale biti odabrane vrlo male veličine pukotina, kroz koje je prolazio upadni snop svetlosti. Dobijeni rezultati su prikazani na slici 4.4..



Slika 4.4. Transparentni spektar filma As₂S₃ /Se₆₀Te₄₀

Vrednosti maksimuma transparencije su u ovom slučaju gotovo pet puta manje nego u prethodna dva. Ekstapolacijom linearnog dela krive transparencije određena je kratkotalasna granica ovog filma na 794 nm, tj. značajno je pomerena ka većim talasnim dužinama. Odgovarajućim proračunom potvrđena je ekvidistantnost minimuma i maksimuma (tabele 5. i 6.).

$\lambda[nm]$	$v_s[cm^{-1}]$	$\Delta v[cm^{-1}]$	$s = \frac{v_s}{\Delta v_{sr}}$	S	
933	10718	356	33.81	34	
903	11074	277	34.93	35	
881	11351	318	35.81	36	
857	11669		36.81	37	
	$\Delta v_{sr} = 317 \ [cm^{-1}]$				

TABELA 5. Maksimumi transparentnog spektra As₂S₃/Se₆₀Te₄₀

$\lambda[nm]$	$v_s[cm^{-1}]$	$\Delta v[cm^{-1}]$	$s = \frac{V_s}{\Delta V_{sr}}$	S
944	10593	348	34.28	34.5
913	10941	258	35.41	35.5
893	11198	323	36.24	36.5
868	11521		37.28	37.5
	Δv_{sr}	$=309 \ [cm^{-1}]$		

U ovom slučaju, prilikom obrade podataka, za dalje analize vezane za proračun indeksa prelamanja, uzimane su direktno određene vrednosti maksimuma i minimuma, a ne vrednosti koje leže na matematički obrađenoj krivoj.

Na osnovu dobijenih rezultata kod sva tri uzorka, mogu se zapaziti sledeće karakteristike:

- jasno ispoljavanje interferencionih efekata, posebno kod jednoslojnih filmova
- visoka transparencija kod filma As₂S₃, pa i Se₆₀Te₄₀, dok je za film As₂S₃/Se₆₀Te₄₀ transparencija znatno slabija i tek je nagovešteno postojanje interferencionih maksimuma
- postojanje kratkotalasne granice
- pomeranje kratkotalasne granice ka većim talasnim dužinama kod dvoslojnog filma u odnosu na jednoslojne filmove.

Na kraju treba posebno istaći da je treći tretirani uzorak dvoslojni film gde se nikako ne može očekivati prosto superponiranje efekata pojedinih slojeva, već bi trebalo sistem analizirati i kao jedinstven, ali i svaki sloj pojedinačno. Tek takva vrlo složena analiza bi mogla da ukaže na sve specifičnosti ovog višeslojnog halkogenidnog filma.

4.3. <u>DISPERZIJA INDEKSA PRELAMANJA</u>

Kao što je već istaknuto, pojava interferencionih maksimuma i minimuma na transparentnim spektrima tankih filmova, može se iskoristiti za određivanje indeksa prelamanja, a potom i apsorpcionog koeficijenta.

Uslovi za pojavu interferencionih maksimuma u transparentnim spektrima tankih filmova, naparenih na podlogu koja ne apsorbuje, određeni su sledećom relacijom:

$$2\pi dn \upsilon_s - \theta = s\pi \tag{4.1.}$$

gde je n indeks prelamanja, s red interferencionog maksimuma, d debljina filma, v_s spektrometrijska frekvencija u interferencionom maksimumu, a θ fazni ugao pri normalnoj refleksiji.

$$\theta = \operatorname{arctg} \frac{2k}{1 - n^2 - k^2} \tag{4.2.}$$

gde je k indeks apsorpcije.

Eksperimenti se postavljaju tako da je $\frac{k^2}{n^2} \ll 1$ i $|\theta| \ll 2\pi dv_s$, pa se interferencija u propuštenom zračenju može približno opisati izrazom :

$$T = \frac{(1-r)^2 e^{-\alpha d}}{\left(1 - r e^{-\alpha d}\right)^2 + 4r e^{-\alpha d} \sin^2(2\pi dn \upsilon_s)}$$
(4.3.)

gde je r refleksiona sposobnost filma, a α koeficijent apsorpcije.

U spektralnoj oblasti, u kojoj je materijal transparentan, zavisnost T = f(hv) se određuje članom koji sadrži kvadrat sinusa fazne debljine filma. Grafičkim prikazivanjem ove zavisnosti, dobijamo gotovo ekvidistantne maksimume, a kriva T = f(hv) je po karakteru bliska sinusoidi, pa se pri razlaganju u Furijeov red može predstaviti u obliku:

$$T(\upsilon) = \frac{A_0}{2} + A_1 \cos(4\pi dn\upsilon)$$
(4.4.)

U tom slučaju, za određivanje indeksa prelamanja mogu se iskoristiti, kako interferencioni maksimumi, tako i interferencioni minimumi, čime dobijamo veći broj podataka, a time i tačniju vrednost parametra. Uslovi za pojavu interferencionih maksimuma i minimuma su:

$$2ndv_{smax} = s_{max}$$

$$2ndv_{min} = s_{min} \pm 1/2$$
(4.5.)

Metod Čeremuhina /24/ je varijanta interferencionog metoda koji omogućava određivanje indeksa prelamanja filma bez poznavanja njegove debljine. Osnove ovog metoda zasnivaju se na sledećem:

Prilikom prolaska svetlosti kroz film, na graničnim površinama dolazi do refleksije.



Slika 4.5. Refleksija na tankom filmu

Koeficijenti refleksije, R_1 (na granici vazduh-film), R_2 (na granici film-podloga) i R_3 (na granici podloga-vazduh) su vezani sa indeksima prelamanja sledećim relacijama:

$$R_{1} = \left(\frac{n - n_{1}}{n + n_{1}}\right)^{2} \qquad R_{2} = \left(\frac{n - n_{2}}{n + n_{2}}\right)^{2} \qquad R_{3} = \left(\frac{n - n_{3}}{n + n_{3}}\right)^{2}$$
(4.6.)

gde je n indeks prelamanja tankog filma, n_1 indeks prelamanja vazduha, a n_2 indeks prelamanja podloge na koju je naparen film.

Transparentni maksimum čine dve komponente: $T_{\max exp}$ i T'_{\max} od kojih je $T_{\max exp}$ -vrednost transparencije očitana sa grafika $T = f(h\nu)$, T'_{\max} , je posledica refleksije svetlosti pri izlasku (na granici podloga-vazduh), tako da je transparencija:

$$T_{\max} = T_{\max \exp} + T'_{\max}$$
(4.7.)

gde se T'_{max} računa iz relacije:

$$T'_{\max} \cong R_3 - \left[\left(1 - T_{\max \exp} \right) R_3 \right]$$
(4.8.)

Na isti način se dobijaju ekstremi za minimum:

$$T_{\min} = T_{\min \exp} + T'_{\min}$$

$$T'_{\min} \cong R_3 - \left[\left(1 - T_{\min \exp} \right) R_3 \right]$$
(4.9.)

Kontrasnost C se izračunava iz relacije:

$$C = \frac{T_{\text{max}}}{T_{\text{min}}} = \left(\frac{1 + \sqrt{R_1 R_2}}{1 - \sqrt{R_1 R_2}}\right)^2$$
(4.10.)

Na osnovu ovih relacija, indeks prelamanja tankog filma se određuje pomoću sledećeg izraza:

$$n = \frac{1}{2} \left\{ \left(n_2 + 1 \right) \left[\sqrt{c} + \sqrt{c - \frac{4n_2}{\left(n_2 + 1 \right)^2}} \right] \right\}$$
(4.11.)

Odredivši n, moguće je proceniti debljinu filma na osnovu uslova za optičku debljinu filma:

$$nd = \frac{1}{\nu_t (\nu_{m+1} - \nu_m)}$$
(4.12.)

Talasni brojevi υ_m i υ_{m+1} se odnose na dva susedna ekstrema na krivoj $T = f(\upsilon)$, tj. na m-ti maksimum i njegov naredni minimum.

4.3.1. Disperzija indeksa prelamanja filma As₂S₃

Na osnovu relacije (4.11.), a koristeći podatke dobijene iz transparentnog spektra (tabele 1. i 2.), izračunat je indeks prelamanja filma As₂S₃. Vrednosti su prikazane u tabeli 7.:

TABELA 7. Indeks prelamanja filma As_2S_3

$\lambda[nm]$	n	Δn
718	2.090	0.009
669	2.144	0.008
628	2.300	0.007
588	2.388	0.007

Proračun daje da je debljina ovog filma d=1.980(6) μ m.

Disperzija indeksa prelamanja za ovaj film prikazana je na grafiku 4.6.:



Slika 4.6. Disperzija indeksa prelamanja filma As_2S_3

4.3.2. Disperzija indeksa prelamanja filma Se₆₀Te₄₀

Odgovarajućim proračunom, koristeći podatke iz tabela 3. i 4., dobijene su vrednosti za indeks prelamanja za film $Se_{60}Te_{40}$. Vrednosti su prikazane u tabeli 8., odnosno, na grafiku 4.7..

$\lambda[nm]$	n	Δn
821	2.450	0.003
746	2.771	0.007
687	4.458	0.004

TABELA 8. Indeks prelamanja filma Se₆₀Te₄₀

Za debljinu ovog filma procenjeno je da iznosi d=1.650(7) μ m.



Slika 4.7. Disperzija indeksa prelamanja za film $Se_{60}Te_{40}$.

4.3.3. Disperzija indeksa prelamanja filma As₂S₃/Se₆₀Te₄₀

Vrednosti indeksa prelamanja dvoslojnog filma date su u tabeli 9., odnosno na grafiku 4.8. Kao što se može zapaziti, ove vrednosti su znatno ispod očekivanih za halkogenidne sisteme.

$\lambda[nm]$	n	Δn	
933	1.690	0.008	
903	1.732	0.009	
881	1.812	0.006	

TABELA 9. Indeks prelamanja filma As₂S₃/Se₆₀Te₄₀

Za debljinu kompletnog filma, odnosno oba sloja, procenjeno je da iznosi d=11.153(9) μ m.



Slika 4.8. Disperzija indeksa prelamanja filma As₂S₃/Se₆₀Te₄₀

Može se uočiti da vrednosti indeksa prelamanja sva tri filma rastu na kraćim talasnim dužinama, što se i očekivalo s obzirom na detektovano postojanje apsorpcione granice. Eksperimentalni podaci, iako je njihov broj ograničen, fitovani su eksponencijalnom funkcijom, u skladu sa teorijskim modelima. Grafički prikaz rezultata sva tri filma daje očekivanu disperzionu krivu. Međutim za razliku od jednoslojnih filmova As_2S_3 i $Se_{60}Te_{40}$ kod kojih su vrednosti indeksa prelamanja na svim talasnim dužinama veće od 2, a što je karakteristika amorfnih halkogenidnih materijala, dvoslojni film $As_2S_3/Se_{60}Te_{40}$ daje nešto niže vrednosti. To ukazuje da dvoslojni film ne može tretirati kao prost zbir pojedinih slojeva i da bi se eksperimentalne krive morale obraditi na bazi drugih teorijskih modela, a ne primenom metoda Čeremuhina.

4.3.4. Disperzija indeksa prelamanja stakla As₂S₃

Disperzija indeksa prelamanja stakla As_2S_3 određena je direktnom metodom prelamanja zraka na prizmi. Snimanje je vršeno pomoću uređaja čija je šema prikazana na slici 4.9..



Slika 4.9. Blok šema uređaja za merenje disperzije indeksa prelamanja 1-ksenonska lampa, 2,6,7-sočiva, 3,5-ulazna i izlazna pukotina, 4-monohromator, 8-uzorak u obliku prizme, 9-fotodioda, 10-pisač

Kao izvor svetlosti koristi se ksenonska lampa pod visokim pritiskom. Sočivima se ova svetlost najpre fokusira na ulaznu pukotinu širine 0.3 mm monohromatora SPM-2, a zatim i na prizmu, pripremljenu od stakla As_2S_3 . Kao detektori svetlosti upotrebljene su Si fotodioda za područje talasnih dužina od 580-1050 nm i Ge fotodioda za interval talasnih dužina od 1200-1800 nm. Fotodioda je vezana za pokretni deo pisača Philips PM 8120. Pomeranjem diode, a time i pisača duž x-ose hvata se signal, koji tada ispisuje pik duž y-ose. Merenjem rastojanja od prizme do fotodiode (1) i rastojanja između registrovanih pikova (S) sa i bez prizme, može se izračunati ugao skretanja.

$$\delta = \operatorname{arctg} \frac{s}{2} \tag{4.12.}$$

Prizma je pripremljena od komada stakla As_2S_3 mehaničkom obradom (brušenje abrazivnim prahom), pri čemu je željena forma obezbeđena korišćenjem specijalno konstruisanog držača, na koji je staklo pričvršćivano tokom obrade. Visoki sjaj graničnih pljosni dobijen je naknadnim poliranjem.

Ugao prizme φ meren je na dvokružnom optičkom goniometru Eneraf Nonus Y-881, sa tačnošću od \pm 1[°].

Za izračunavanje indeksa prelamanja koristi se relacija za upadni zrak normalan na stranicu prizme koja sa osnovom gradi prav ugao:

$$n = \frac{\sin(\varphi + \delta)}{\sin\varphi} \tag{4.13.}$$

gde je δ ugao skretanja zraka pri prolasku kroz prizmu.

4.3.4.1. Eksperimentalni rezultati

Merenjem na dvokružnom optičkom goniometru dobijene su vrednosti polarnih koordinata ρ i ξ , na osnovu kojih se onda lako izračunava ugao prizme φ .

TABELA 10. Polarne koordinate

ρ[⁰]	ξ [⁰]	
274.51	64.50	
260.18	260.23	

Prvi par vrednosti odgovara jednom refleksu, a drugi par, drugom refleksu. Uga
o φ se izračunava prema sledećoj relaciji:

$$\varphi = \xi_2 - \xi_1 = 15.33^{\circ} \tag{4.14.}$$

U tabeli 11. date su vrednosti za rastojanja između registrovanih pikova na pisaču (slika 4.9.) sa i bez prizme.

$\lambda[nm]$	s [mm]	$\lambda[nm]$	s [mm]
580	188.5	1050	159.7
600	184.5	1100	159.6
650	177.8	1150	158.4
700	170.0	1200	154.5
750	167.0	1300	153.3
800	165.5	1400	152.9
850	163.5	1500	152.7
900	162.2	1600	151.1
950	131.0	1700	147.9
1000	166.7	1800	145.4

TABELA 11. Rastojanja među pikovima

Eksperiment je realizovan tako da je rastojanje od prizme do fotodiode isto za oba detektora i iznosi 1=319 mm.

Na bazi ovih merenja, izračunate su vrednosti za indeks prelamanja, a prikazane su grafički u zavisnosti od talasne dužine na slici 4.10..



Slika 4.10. Disperzija indeksa prelamanja stakla As₂S₃

Poređenjem rezultata prikazanih na slikama 4.10. i 4.6., može se uočiti da se vrednosti indeksa prelamanja stakla As₂S₃ razlikuju, odnosno veće su od vrednosti indeksa prelamanja filma As₂S₃, iz čega se može zaključiti da je prilikom termičkog naparavanja ovog filma na odgovarajuću podlogu došlo do izmene u njegovoj strukturi. Ovakvi efekti se po pravilu sreću kod svih višekomponentnih uzoraka pa u nekim slučajevima i kod monofaza. Pokazano je u nizu ekperimenata da su odgovarajući parametri filma u značajnoj meri u saglasnosti sa vrednostima na balku tek posle prvog termičkog tretiranja sveže prepariranog uzorka. S obzirom da su u ovom radu tretirani samo sveži filmovi, ovakve razlike u vrednostima indeksa prelamanja su očekivane.

Ovi eksperimentalni rezultati omogućili su da se odredi vrednost sile oscilatora i talasnih dužina sopstvenih oscilacija elektrona. Kao što je već pomenuto, teorija koja se koristi za objašnjavanje pojava vezanih za indeks prelamanja se zasniva na pretpostavci da elektroni u kondenzovanim stanjima osciluju sa frekvencijama u vidljivoj i UV oblasti i da je elektična polarizabilnost funkcija od frekvencije polja. Ova zavisnost data je u najopštijem obliku relacijom (3.10.) gde je λ_i - talasna dužina koja odgovara sopstvenim oscilacijama, λ - talasna dužina upotrebljenog elektromagnetnog polja, a A_i empirijski koeficijent proporcionalnosti. Parametri λ_i i A_i su određeni strukturom materijala, uslovima sinteze i spoljašnjim uslovima. Ako pretpostavimo da valentni elektroni osciluju sa istom frekvencijom, jednačina (3.10.) se može transformisati u sledeću formu :

$$n^{2} - 1 = A \frac{\lambda^{2}}{\lambda^{2} - \lambda_{0}^{2}}$$
(4.15.)

gde je A ukupna sila oscilatora elektronskog sistema. Da bi se mogli odrediti parametri A i λ_0 , potrebno je izvršiti linearizaciju jednačine po λ^2 :

bi se mogli odrediti parametri A i
$$\lambda_0$$
, potredno je izvrsiti linearizaciju jednačnie po λ :

$$\frac{\lambda^2}{n^2 - 1} = \frac{1}{A}\lambda^2 - \frac{1}{A}\lambda_0^2$$
(4.16.)



Grafička zavisnost ($\lambda^2 / n^2 - 1$) u funkciji od λ^2 za staklo As₂S₃ prikazana je na slici 4.11..

Slika 4.11. Linearizacija disperzije indeksa prelamanja stakla As_2S_3

Član 1/A predstavlja koeficijent pravca prave, a λ^2_0 /A je slobodan član.

Za vrednost sile oscilatora dobijena je vrednost $A = 4.83960 \pm 0.00119$, a za talasnu dužinu sopstvenih oscilacija stakla As₂S₃ $\lambda_0 = 292.18$ nm, što znači da se nalazi u bliskoj UV oblasti elektromagnetnog zračenja. Eksperimentalni podaci su fitovani na linearnu zavisnost sa faktorom slaganja 0.9995.

4.4.1. Disperzija apsorpcionih koeficijenata

Visoka transparencija (kod nekih halkogenida i preko 80%) u infracrvenom i vidljivom delu spektra je jedna od najznačajnijih karakteristika za široku aplikaciju ovih materijala.



Slika 4.12. Transparentni spektar amorfnog $Ge_{20}As_{12}S_{12}Se_{40}I_{14}$

Na slici 4.12. je prikazan transparentni spektar stakla $Ge_{20}As_{12}Se_{40}I_{14}$, na kom se zapaža jasna apsorpciona granica u vidljivom delu spektra, kao i niz apsorpcionih traka u IC oblasti.

Apsorpcija u IC oblasti nastaje kao rezultat višefononske apsorpcije u bliskom okruženju, dok je kratkotalasna apsorpcija rezultat prelaza elektrona iz valentne u provodnu zonu. Ova kratkotalasna granica se naziva apsorpciona granica i predstavlja širinu optički zabranjene zone, koja se za halkogenide kreće u intervalu od 1.3-2.6 eV.

Vrednost koeficijenta apsorpcije α se može izračunati iz merenja relativne transparencije, korišćenjem relacije:

$$\alpha = \frac{1}{d} \ln \frac{(1 - R_1)(1 - R_2)(1 - R_3)}{T_s}$$
(4.17.)

gde je d debljina, R_1 , R_2 , R_3 su veličine definisane jednačinom (4.6.), a T_s je tzv. srednja eksperimentalna transparencija.

$$T_s = \sqrt{T_{\max} T_{\min}} \tag{4.18.}$$

Apsorpciona granica za tipična halkogenidna stakla, može se podeliti na tri oblasti.



Slika 4.13. Apsorciona granica kod amorfnog stakla As₂Se₃

Prva oblast ($\alpha < 1 \text{ cm}^{-1}$) predstavlja kraj apsorpcije i ponaša se po Urbach-ovom pravilu /25/. Koeficijent apsorpcije u ovoj oblasti se opisuju relacijom:

$$\alpha = C e^{\frac{h\nu}{E_t}} \tag{4.19.}$$

gde je $E_t > \frac{kT}{\gamma}$, a γ je konstanta materijala.

Druga oblast ($\alpha \le 10^4 cm^{-1}$) je oblast gde koeficijent apsorpcije opada po eksponencijalnom zakonu oblika:

$$\alpha = \alpha_0 e^{-\gamma \frac{E_g^0 - h\nu}{kT}}$$
(4.20.)

gde je E_{g}^{o} širina optički zabranjene zone.

Treća oblast je oblast velike apsorpcije ($\alpha \ge 10^4 cm^{-1}$), koja se može opisati narednom jednačinom:

$$\alpha = A \frac{\left(hv - E_g^0\right)^m}{hv} \tag{4.21.}$$

gde je m koeficijent koji uzima vrednosti 2 ili 3, u zavisnosti od toga da li je prelaz kvantnomehanički dozvoljen ili ne.

4.4.1.1. Eksperimentalni rezultati

Koeficijenti apsorpcije filmova As_2S_3 , $Se_{60}Te_{40}$ i $As_2S_3/Se_{60}Te_{40}$ određeni su prema relaciji (4.17.), a dobijene vrednosti su predstavljene u tabelama 12., 13. i 14., odnosno na graficima 4.14., 4.15. i 4.16. respektivno.

<i>E</i> [eV]	$\alpha [10^2 \mathrm{cm}^{-1}]$	$\Delta \alpha \ [10^2 \ \mathrm{cm}^{-1}]$
1.76	1.77	0.16
1.89	1.78	0.18
2.02	1.14	0.19
2.15	10.00	0.19
2.38	26.42	0.15

TABELA 12. Apsorpcioni koeficijent za film As₂S₃



Slika 4.14. Zavisnost apsorpcionog koeficijenta od energije za film As_2S_3

<i>E</i> [eV]	$\alpha \left[10^2 \mathrm{cm}^{-1}\right]$	$\Delta \alpha [10^2 \mathrm{cm}^{-1}]$
1.64	12.71	0.15
1.73	4.04	0.18
1.85	2.89	0.07
2.02	122.0	2.5

TABELA 13. Apsorpcioni koeficijent za film $Se_{60}Te_{40}$



Slika 4.15. Zavisnost apsorpcionog koeficijenta od energije za film $Se_{60}Te_{40}$

<i>E</i> [eV]	$\alpha [10^3 \text{ cm}^{-1}]$	$\Delta \alpha \ [10^3 \ \mathrm{cm}^{-1}]$
1.33	2.45	0.11
1.38	1.27	0.06
1.45	5.0	0.7

TABELA 14. Apsorpcioni koeficijent za film As₂S₃/Se₆₀Te₄₀



Slika 4.16. Zavisnost apsorpcionog koeficijenta od energije za film $As_2S_3/Se_{60}Te_{40}$

Kao što se može zapaziti, vrednosti apsorpcionog koeficijenta su značajne, što je po pravilu karakteristika halkogenidnih sistema u formi tankih filmova /26/. Tako visoke vrednosti ovog parametra omogućuju proračun nekih drugih optičkih konstanti materijala.

4.4.2. Metode određivanja širine optički zabranjene zone

Vrednost širine optički zabranjene zone može se odrediti na dva načina. Prvi način je predložio Stuke-a /27/, a zasnovan je na osobini da kod mnogih amorfnih poluprovodnika zabranjenoj zoni po elektroprovodljivosti odgovara energija fotona pri kojoj koeficijent optičke apsorpcije ima vrednost oko 10^4 cm⁻¹. Na osnovu toga, on je predložio da se širina optički zabranjene zone određuje sa grafika $\alpha = f(h\nu)$, i to tako što se za $\alpha = 10^4$ cm⁻¹ direktno očita vrednost energije.



Slika 4.17. Metod određivanja širine optički zabranjene zone metodom Stuke-a

Drugi način određivanja širine optički zabranjene zone je ekstrapolacija linearnog dela krive $\alpha = f(h\nu)$. Na slici 4.18. je prikazana kriva stakla As_{38.5}Se₅₄I_{7.5}, koja je dobijena superponiranjem rezultata zabeleženih pri različitim debljinama uzorka: (1) d=0.2 cm, (2) d=0.07 cm, (3) d=0.022 cm, (4) d=0.0073 cm (5) d=0.0024 cm.



Slika 4.18. Metod određivanja širine optički zabranjene zone ekstrapolacijom linearnog dela krive

 E_g^0 određena na ovaj način je, po pravilu, manja za 0.1-0.2 eV od vrednosti dobijene po Stukeovoj metodi.

4.4.2.1. Eksperimentalni rezultati

Širina optički zabranjene zone filmova As_2S_3 , $Se_{60}Te_{40}$ i $As_2S_3/Se_{60}Te_{40}$ određena je obema metodoma. Pri tome treba istaći da je za metod Stuke-a odabrana vrednost α =10³ cm⁻¹, što se ponekad koristi kad su u pitanju relativno velike apsorpcije /28,29/. Dobijene vrednosti prikazane su u tabeli 15.

C1	E_{g} [eV]		
m	Metod Stuke-a	Metod ekstrapolacije linearnog dela krive	
As_2S_3	2.380(5)	2.170(5)	
Se ₆₀ Te ₄₀	2.020(5)	1.980(5)	
As ₂ S ₃ /Se ₆₀ Te ₄₀	1.450(5)	1.320(5)	

TABELA	15. Širina	optički	zabranjene	zone filmova

Može se zapaziti da su vrednosti širine optički zabranjene zone dobijene metodom ekstrapolacije linearnog dela matematički obrađene krive manje od vrednosti dobijenih metodom Stuke-a za 0.1 - 0.2 eV, što je u skladu sa prethodnim eksperimentalnim iskustvima.

5. <u>ZAKLJUČAK</u>

U radu su prikazani rezultati ispitivanja optičkih karakteristika halkogenida u formi jednoslojnih i dvoslojnih filmova debljine reda nekoliko µm, kao i balk forme arsen sulfida. Određena je širina optički zabranjene zone, analizirane su karakteristike spektra transparencije, kao i disperzija indeksa prelamanja.

Utvrđeno je da se apsorpciona ivica menja sa promenom sastava materijala. Pokazano je da vrednosti širine optički zabranjene zone veoma zavise od izbora metode određivanja. Vrednosti širine optički zabranjene zone od 1.45 do 2.38 eV koje su dobijene za ispitivane filmove, odgovaraju vrednostima širine zone karakterističnim za poluprovodničke materijale.

Pokazalo se da vrednosti indeksa prelamanja sva tri filma rastu na kraćim talasnim dužinama, što je u skladu sa detektovanim postojanjem apsorpcione granice. Eksperimentalni podaci fitovani su eksponencijalnom funkcijom, saglasno poznatim teorijskim modelima. Zavisnost indeksa prelamanja od talasne dužine elektromagnetnog zračenja kod svih tretiranih uzoraka je tipična kriva normalne disperzije. Međutim za razliku od jednoslojnih filmova As₂S₃ i Se₆₀Te₄₀, kod kojih su vrednosti indeksa prelamanja na svim talasnim dužinama veće od 2, a što je karakteristika amorfnih halkogenidnih materijala, dvoslojni film As₂S₃/Se₆₀Te₄₀ daje nešto niže vrednosti, što ukazuje da se dvoslojni film ne može tretirati kao prost zbir pojedinih slojeva i da bi se eksperimentalne krive morale obraditi na bazi drugih teorijskih modela, a ne primenom metoda Čeremuhina.

Za staklo As₂S₃ su na osnovu eksperimentalnih podataka izračunate vrednosti sile oscilatora (A=4.8396±0.0012) i talasna dužina sopstvenih oscilacija λ_0 =292.18 nm, što znači da se nalazi u bliskoj UV oblasti elektromagnetnog zračenja.

Na kraju treba posebno istaći da je treći tretirani uzorak dvoslojni film gde se nikako ne može očekivati prosto superponiranje efekata pojedinih slojeva, već bi trebalo sistem analizirati i kao jedinstven, ali i svaki sloj pojedinačno. Tek takva vrlo složena analiza bi mogla da ukaže na sve specifičnosti ovog višeslojnog halkogenidnog filma.

U ovom radu su dati samo prvi eksperimentalni podaci koji će omogućiti dalje analize ovog i sličnih halkogenidnih sistema.

6. LITERATURA

- 1. Frerichs R.: New optical glasses with good transparent in the infrared.-J. Opt. Soc. Amer., 1953, vol. 43, p. 643, 1153-1154.
- 2. Айо Ј., Г. Кокорина В.Ф.: Оптические стекла, прозрачние в инфракраснои области спектра-Опт.механ. Пром, 1961, с. 39-41.
- 3. Tanaka M.: Infrared spectra of arsenic-sulfar glasses produced by vaporization at normal pressure, Yogyo Kyokai, 1978, vol. 72, p. 176-182.
- 4. Hruby A.: A study of glass-forming ability and phase diagram of the arsenic-sulfur system, J. Non-Cryst. Solids, 1978, vol. 28, p.139-142.
- 5. Jonker W.P.A.: Untersuchungen uber das System Schefelund Arsen, Ztschr. Anorg. Chem., 1909, Bd. 62, S. 89-107.
- 6. Sarrach J., Neufville J.P., Hawort W.L.: Studies of amophous Ge-Se-Te alloys.-J. Non-Cryst. Solids, 1976, vol. 22, p. 245-267.
- 7. Туряница И.И., Спасюк И.П., Химинец В.В., Семрад Е.Е., Тезив докл. Респ. Совещ, Ужгород, 1975, с. 134-136.
- 8. Heavens O.S.: Thin Film Physics, London, 1970, p. 69.
- 9. Heavens O.S.: Thin Film Physics, London, 1970, p.79.
- 10. W. Snell: Risneri opticam cum Annotationibus Willibrordi Snellii, Pars Prima, Librum Primum Continens, (ed. by I.A. Vollgraff), (Platini, Ghent 1918.)
- 11. H.A. Lorentz: Uber die Beziehung zwischen der Fortpflanz ungsgeschwinddigkeit des Lichtes und der Korperdichte, (1880.).
- 12. R. de L. Kroning, H.A. Kramers : Zur theorie der Absorption und Disperzion in der Rontgenspektren, Z. Phys. 48, 174-179, (1928.)
- 13. A.L. Cauchy: Sur la refraction et ta reflexion de la lumiere, Bull. des Sc. Math. 14, 6-10 (1830.)
- Sellmeier: Zur Erklarung der abnormen Farbenfolge im Spectrum einiger Substanzen, Pogg. Ann. 143, 272-282, (1871)
- 15. Schott Glas: Optical glass catalogue (Mainz 1992.)
- 16. C.F. Bohren, D.R. Huffman: Absortion and scattering of light by small particles (Wiley, New York 1983).
- 17. P. Drude: The theory of optics (Longmans Green, New York 1992.)

- 18. Schott Glas: Optical glass catalouge (Mainz 1996.)
- 19. M. Herzberger: Color correction in optical systems and a new dispersion formula, Optica Acta 6, 197-215, (1959.)
- 20. W. Geffcken: Bedeutung und Gultigkeitsbereich der Abbeschen Gleichung für die Teildispersion von Glasern, Ed. by E.Schott, pp. 255-268 (Stuttgart, 1959.)
- 21. W. Geffcken: Partial dispersion of glasses, part 2, Optica Acta 12, 275-304 (1965.)
- 22. W. Geffcken: Partial dispersion of glasses, part 3, App. Opt. 12, 2978-2990, (1973.)
- 23. H.A. Buchdahl: Optical abberation coefficients (Dover, New York 1968.)
- 24. Черемухин Г.С., Кириенко Б.В., Гурдон Е.К., Оптико-механ. Пром., 6, 13, (1976.)
- 25. Urbach F.: Phys. Rev., 92, 1324, 1953.
- 26. S. R. Lukić: Optical properties of thin chalcogenide amorphous films, Sol. State Phenom., 61/62, 97-104, 1998.
- 27. Stuke J.J., J. Non-cryst. Solids, 4,1, 1970.
- 28. S. R. Lukić, D.M. Petrović, M.I. Avramov, E. Marquez: The shift of the absorbtion edge of thin chalogenide films with copper, J. Mater. Sci. Lett. 16, 1845-1847, 1997.
- 29. S. R. Lukić, D. M. Petrović, V. B. Petrović, D.D. Petrović: Dispersion of refractive index of the noncrystalline chalcogenides in Cu-As-Se system, procc. YUCOMAT 2003 (u štampi).



UNIVERZITET U NOVOM SADU

PRIRODNO-MATEMATIČKI FAKULTET

KLJUČNA DOKUMENTACIJSKA INFORMACIJA

Redni broj: RBR Identifikacioni broj: IBR Tip dokumentacije: Monografska dokumentacija TD Tip zapisa: Tekstualni štampani materijal TZ Vrsta rada: Diplomski rad VR Autor: Mirjana Šiljegović AU Mentor: dr Svetlana Lukić MN Naslov rada: Refrakcija na jednoslojnim i dvoslojnim tankim filmovima i balku nekih amorfnih halkogenida NR Jezik publikacije: Srpski (latinica) JP Jezik izvoda: Srpski/Engleski Л Zemlja publikacije: Srbija i Crna Gora ZP Uže geografsko područje: Vojvodina UGP **Godina:** 2003 GO Izdavač: Autorski reprint IZ Mesto i adresa: Braće Jugović B2, Zvornik, RS MA Fizički opis rada: FO

Naučna oblast: Fizika NO Naučna disciplina: Fizika kondenzovane materije ND Ključne reči: sistem As-S, sistem Se-Te, transparencija, apsorpciona granica, indeks prelamanja, apsorpcioni koeficijent PO UDK: Čuva se: ČU Važna napomena: VN Izvod:

U radu su prikazani rezultati ispitivanja optičkih karakteristika halkogenida u formi jednoslojnih i dvoslojnih filmova filmova debljine reda nekoliko μ m, kao i balk forme arsen sulfida. Određena je širina optički zabranjene zone, analizirane su karakteristike spektra transparencije, kao i disperzija indeksa prelamanja.

Vrednosti širine optički zabranjene zone od 1.32 do 2.38 eV dobijene za ispitivane filmove su vrednosti širine zone koje su karakteristične za poluprovodničke materijale. Zavisnost indeksa prelamanja od talasne dužine elektromagnetnog zračenja kod svih tretiranih uzoraka je tipična kriva normalne disperzije. Za staklo As₂S₃ su na osnovu eksperimentalnih podataka izračunate vrednosti sile oscilatora i talasna dužina sopstvenih oscilacija.

IZ

Datum prihvatanja teme od strane NN veća: 03.12.2003. DP Datum odbrane: 25.12.2003. DO Članovi komisije: KO Predsednik: dr Dragoslav Petrović, redovni profesor Prirodno-matematičkog fakulteta u Novom Sadu Član: dr Svetlana Lukić, redovni profesor Prirodno-matematičkog fakulteta u Novom Sadu Član: dr Radomir Kobilarov, redovni profesor Prirodno-matematičkog fakulteta u Novom Sadu

UNIVERSITY OF NOVI SAD FACULTY OF SCIENCES KEY WORDS DOCUMENTATION

Accesion number: ANO **Identification number:** INO Document type: Monograph document DT Type of record: Printed text TR **Contents code:** CC Author: Mirjana Šiljegović AU Mentor: dr. Svetlana Lukić MN Title: Refraction on single-layer and multilayer thin films and bulk of some amorphous chalcogenides ΤI Language of text: Serbian (latinic) LT Language of abstract: Serbian/English LA Country of publication: Serbia and Montenegro СР Locality of publication: Vojvodina LP Publication year: 2003. PY Publisher: Author's reprint PU Publ. place: Braće Jugović B2, Zvornik, RS PP **Physical description:** PD

Scientific field: Physics SF Scientific discipline: Physics of Condensed Matter SD Key word: system As-S, system Se-Te, transparency, absorbtion edge, refractive index, absorbtion coefficient KW UC: Holding data:

HD Note:

Ν

Abstract:

The optical characteristics of chalcogenide materials in forms of single layer and multilayer films with thickness of few μ m and balk forms of As₂S₃ are shown in this paper. Spread of the optically prohibited zone has been measured, the characteristics of transparency spectra and dispersion of refractive index have been also analysed.

Calculated values of spread of the optically prohibited zone for given films from 1.32-2.38 eV are typical for semiconductor materials. Dependence of refractive index of wavelength for all three films is typical curve of normal dispersion. On the base of experimental data, it has been calculated the value of oscillator's force and wavelength of self-oscillations.

AB

Accepted by the Scientific Board on: 03.12.2003. ASB Defended: 25.12.2003. DE Thesis defend board: DB President: dr Dragoslav Petrović, full professor,

Faculty of Sciences, Novi Sad

Member: dr Svetlana Lukić, full professor,

Faculty of Sciences, Novi Sad

Member: dr Radomir Kobilarov, full professor, Faculty of Sciences, Novi Sad