

文章编号: 0258-7025(2008)Supplement2-0271-04

二维抗光反射亚波长周期结构的 分析与实现

郝 琦¹ 姜 田¹ 冯一军¹ 倪亚茹² 陆春华²

(¹ 南京大学电子科学与工程系, 江苏 南京 210093; ² 南京工业大学材料科学与工程学院, 江苏 南京 210009)

摘要 与传统光学抗反射膜相比, 二维抗反射亚波长周期结构可以通过调整结构尺寸、周期等参数调节整个结构的等效折射率分布, 从而达到更好的抗光反射效果。通过基于有限元方法的电磁场全波分析方法, 对纳米球形亚波长周期结构进行了深入的分析, 研究了纳米球尺寸和周期等结构参数对反射率的影响。使用溶胶-凝胶法制备了不同尺寸的二氧化硅球形纳米颗粒, 并制成密排球形颗粒样品。反射率测量实验表明该样品在可见光和红外波段具有良好的抗反射性能。并在理论计算和实验验证的基础上, 给出了一种可行的密排球形亚波长抗反射表面的设计方法。

关键词 材料; 抗反射; 亚波长周期结构; 纳米小球; 溶胶-凝胶法

中图分类号 O436 文献标识码 A doi: 10.3788/CJL200835s2.0271

Analysis and Fabrication of the Two-Dimensional Periodic Anti-Reflective Subwavelength Structure

Hao Yu¹ Jiang Tian¹ Feng Yijun¹ Ni Yaru² Lu Chunhua²

(¹ Department of Electronic Science and Engineering, Nanjing University, Nanjing, Jiangsu 210093, China)
(² College of Material Science and Engineering, Nanjing University of Technology, Nanjing, Jiangsu 210009, China)

Abstract Compared with traditional optical multilayer coating method, the two-dimensional subwavelength periodic structure can achieve better anti-reflective effect with the easy adjustment of the whole structure's refractive index, by varying the structural parameters, such as the size and the period. Based on the finite element method of full-wave electromagnetic field analysis, we investigate the periodic subwavelength structure of closely-packed nano-particles, and study on how the geometry of the structure affects the reflectivity. We also prepare different sizes of silica nano-particles by using the sol-gel method, and fabricate anti-reflective samples with these particles. Reflection measurement of the samples showed good anti-reflective performance at optical range. Finally we propose a practical method for designing periodic antireflective subwavelength structure of nano-particles on the basis of both theoretical calculation and experimental verification.

Key words materials; anti-reflection; periodic subwavelength structure; nano-particle; sol-gel method

1 引 言

高折射率材料, 如在红外光电系统中常用的锗、硅、砷化镓、硒化锌等材料, 由于折射率较高, 具有较大的反射系数, 给光学元件的性能带来不必要的损失, 因此必须对光学元件表面进行抗反射处理。传统的方法是在元件表面淀积单层或多层膜系的抗反射镀膜。但是积淀膜层有其固有的一些缺陷, 如抗

蚀性差、热胀失配、组分渗透与扩散等问题。特别是在红外环境要求的镀层太厚, 容易产生冷分层现象, 严重影响系统的性能^[1]。常用的光栅刻蚀方法能较好地解决上述问题^[2], 但通常限于面积较小的元件, 对于大面积的器件或物体则存在制作成本过高等问题。针对上述两种方法存在的问题, 本文提出了使用二氧化硅球形纳米颗粒形成的密排结构在

基金项目: 国家安全重大基础研究和国家自然科学基金(60671002)资助课题。

作者简介: 郝琦(1986—), 女, 博士研究生, 主要从事电磁场理论方面的研究。E-mail: goodfish919@163.com

导师简介: 冯一军(1964—), 男, 博士, 教授, 主要从事电磁场理论与微波技术、人工电磁材料等方面的研究。

E-mail: yifeng@nju.edu.cn(通信作者)

可见光及近红外波段实现抗光反射的方法,并进行了结构的计算分析和简易实现。

2 仿真计算

有效介质理论(EMT)认为,当入射光通过小于光波长的结构时,光波的性质类似于光波通过一等效均匀介质,波阵面的形状不发生改变,等效介质的光学常数、介电常数、磁导率等由结构的占空比来确定^[3~5]。由传输线理论可知,形成合理的折射率过渡是实现抗光反射表面的关键。通过调节过渡层的结构尺寸,使折射率过渡更加合理,以达到理想的抗光反射效果。

对于规则的矩形光栅,已有较成熟的分析方法得到结构的等效参数,从而进行较精确的计算得到反射率和透射率。然而对于球形结构,光波的传播比较复杂,即使根据 Floquet-Bloch 理论,应用平面波展开法,还是无法提供具体的透射率和折射率^[6]。

本文使用基于有限元方法的全波电磁仿真软件 Ansoft HFSS,在光波垂直入射情况下,对球形亚波长周期结构中的光传播和反射进行了全波仿真。由于计算的结构存在周期性,因此,可以利用周期性边界条件对结构的一个周期单元进行计算得到整个结构的反射率。图 1 即为计算的单元结构模型俯视图。小球和基片的材料均为二氧化硅,基片四周为周期边界条件,底面为 PML 吸收边界。图中 T 为小球的排列周期, d 为小球粒径,采用 Waveport 端口激励。

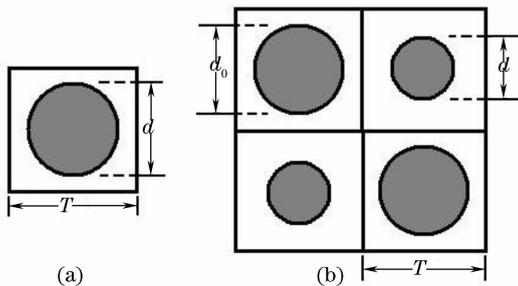


图 1 Ansoft HFSS 计算结构模型俯视图

(a) 2.1 节与 2.2 节使用模型;(b) 2.3 节使用模型

Fig.1 Vertical view of the models of the structures calculated by Ansoft HFSS. (a) model used in sections 2.1 and 2.2; (b) model used in section 2.3

2.1 球形密排结构尺寸对反射率的影响

密排结构,即 $T/d=1.0$ 时,计算结果如图 2 所示,随着球形颗粒粒径的增加,反射率的最小值对应的波长逐渐增加,对应频率向低频移动,而对反射率

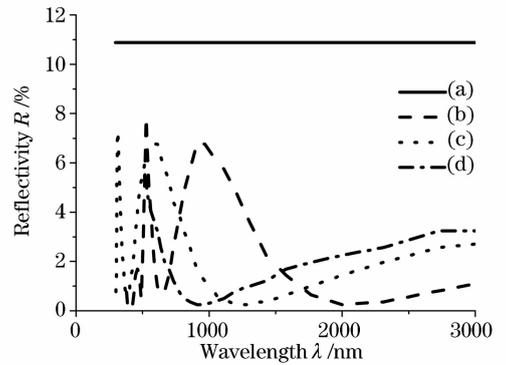


图 2 球形颗粒粒径 d 对反射率的影响。(a) 没有球形结构;(b) $d=400$ nm;(c) $d=240$ nm;(d) $d=180$ nm
Fig.2 Effect of the particles' diameter d on the reflectivity. (a) without particles; (b) $d=400$ nm; (c) $d=240$ nm; (d) $d=180$ nm

的最小值几乎没有影响。

在密排结构情况下,不同粒径的小球结构占空比均为 78.5%,因此对应着同一的等效介质参数,反射率的最小值保持恒定。小球半径与抗反射的最佳波长成正比关系,当半径增大时,最佳波长也增大。

2.2 球形结构的周期对反射率的影响

如图 3 所示,随着小球排列更加紧密,反射率的最小值对应的波长逐渐增大,略微向低频移动。与小球尺寸相比,这种移动的幅度要小得多。 T/d 为 1.2 时,反射率的最小值达到最小。这是因为当 T/d 为适当值的时候,结构的等效折射率实现了折射率的最优化过渡,从而能使结构的抗光反射达到最佳效果,使反射率的最小值达到最小。

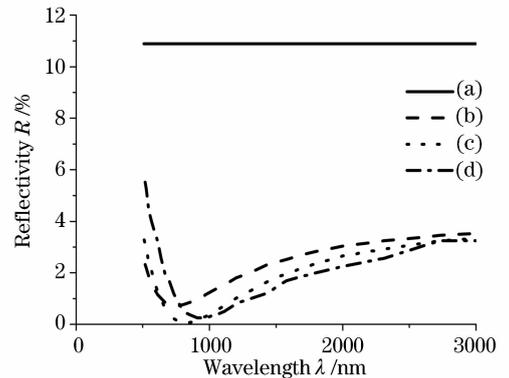


图 3 粒径 d 为 180 nm 小球按不同周期 T 排列对反射率的影响。(a) 没有球形结构;(b) $T/d=1.5$;(c) $T/d=1.2$;(d) $T/d=1.0$

Fig.3 Particles with a fixed diameter $d=180$ nm closely packed in different periods T . (a) without particles; (b) $T/d=1.5$; (c) $T/d=1.2$; (d) $T/d=1.0$

2.3 球形结构粒径大小分布对反射率的影响

实验中制备的小球粒径不可能完全一致,而粒径在一定范围内的分布更加符合实验的实际情况,因此研究了不同粒径小球构成的二维周期结构的反射率(图4)。通过计算可以看出,粒径分布对反射率曲线几乎没有显著影响,只有在 $d/d_0 = 0.8$ 时,反射率有显著的减小。这是因为进一步的模型调整,使结构的等效折射率有了更加合理的变化。

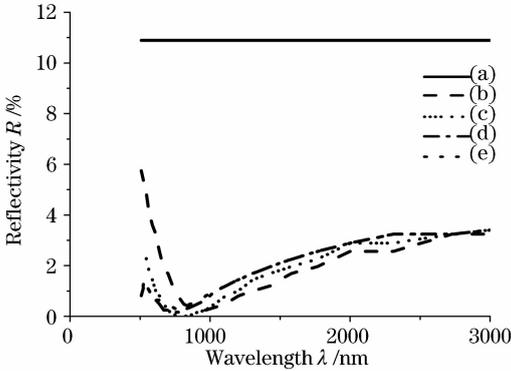


图4 粒径 d_0 为180 nm小球具有相同的 T/d_0 ,存在不同的粒径分布对反射率的影响。(a)没有球形结构;(b) $d/d_0 = 1.0$;(c) $d/d_0 = 0.8$;(d) $d/d_0 = 0.5$;(e) $d/d_0 = 0$

Fig. 4 Particles with fixed $d_0 = 180$ nm and $T/d_0 = 1.2$, packed in different dispersion of d . (a) without particles; (b) $d/d_0 = 1.0$; (c) $d/d_0 = 0.8$; (d) $d/d_0 = 0.5$; (e) $d/d_0 = 0$

3 实验

3.1 制备二氧化硅球形纳米颗粒

3.1.1 溶胶-凝胶法

采用溶胶-凝胶法制备单分散二氧化硅球形纳米颗粒。溶胶-凝胶工艺是制备单分散二氧化硅球形颗粒的一种重要方法。该方法以金属醇盐或无机盐为前驱物,经水解缩聚反应过程逐渐凝胶化,最后经过一定的后处理(陈化、干燥)得到所需的材料^[7]。Stober等^[8,9]发现用氨作正硅酸四乙酯(TEOS)水解反应的催化剂可以形成单分散的二氧化硅球形颗粒。

3.1.2 实验试剂

正硅酸四乙酯(A. R.)由国药集团化学试剂有限公司生产。无水乙醇(C_2H_5OH)(A. R.),氨水(体积分数为25%)(A. R.)由南京化学试剂有限公司生产。制得球形颗粒如图5所示。

3.2 旋涂法制备样品

聚甲基丙烯酸甲酯粉(PMMA)。丙酮

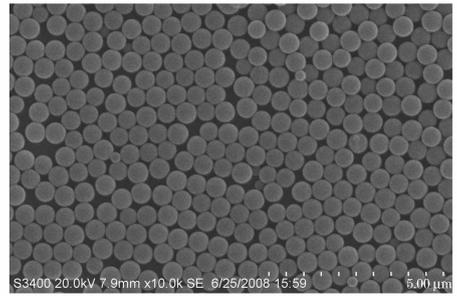


图5 扫描电子显微镜下样品照片

Fig. 5 Pictures of the samples under scanning electronic microscope (SEM)

(C_3H_6O)(A. R.)由国药集团化学试剂有限公司生产。乙酸乙酯($CH_3COOC_2H_5$)(A. R.)由南京化学试剂有限公司生产。邻苯二甲酸二丁酯($C_6H_4(COOC_4H_9)$)(A. R.)由徐州化工厂生产。将实验制得的二氧化硅球形纳米颗粒分散在制得的胶粘剂中,并旋涂在基片上^[10]。

3.3 光学测量结果

将含有不同浓度,平均粒径为583 nm的二氧化硅球形纳米颗粒的胶粘剂匀胶在基片上。并使用分光光度计在可见光及近红外波段对样品进行反射测量,通过与标准板的反射率比较,得到样品的绝对反射率^[11]。测量结果如图6所示,含有二氧化硅颗粒的样品确实取得了良好的抗光反射效果,随着二氧化硅纳米颗粒排列密度的增大,从疏松到致密,球形颗粒的排列周期 T 减小,反射率最小值对应的波长增大的幅度较小,反射率减小的幅度明显增大,这与2.2节中所述周期 T 对反射率的影响规律一致。

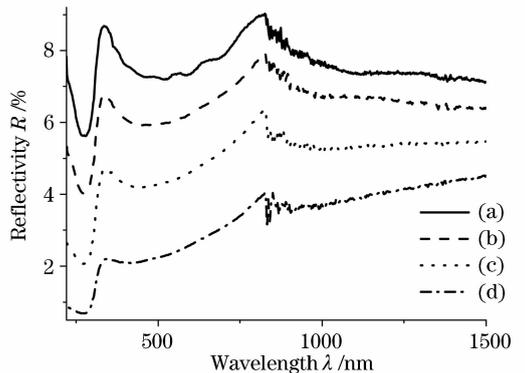


图6 二氧化硅纳米颗粒密度对介质表面反射率的影响 (a)不含二氧化硅颗粒;(b)~(d)颗粒密度逐渐增大

Fig. 6 Effects of SiO_2 nano-particle concentration on the reflectivity on the interface. (a) adhesive without SiO_2 nano-particles; the concentrations of the nano-particles in samples (b) < (c) < (d) are increasing

4 结 论

计算和实验表明,亚波长二氧化硅小球二维密排周期结构具有良好的抗光反射效果。颗粒的粒径 d 对于抗光反射的最佳波长产生显著影响,最佳波长随着粒径的增大而增大,即颗粒的粒径 d 控制反射曲线左右移动。颗粒的排列周期 T 与小球的粒径分布则主要影响反射率的减小幅度,当 T/d 取得恰当值时,可以将反射率的减小幅度优化到最大,即颗粒的排列周期 T 与小球的粒径分布控制反射曲线的上下移动。使用旋涂法实现的密排球形纳米颗粒抗反射表面,在特定波段取得了良好的抗反射效果,并且工艺简单,易于掌握,为实现抗反射表面提供了一种新的思路和方法。

参 考 文 献

- 1 D. H. Raguin, G. M. Morris. Antireflection structured surfaces for the infrared spectral region [J]. *Appl. Opt.*, 1993, **32**(7): 1154~1167
- 2 Chen Sixiang, Yi Xinjian, Li Yi. Design and fabrication of antireflection structured surfaces [J]. *Acta Optica Sinica*, 2001, **21**(8):1001~1003
陈思乡,易新建,李 毅. 亚波长结构对10.6 μm 的抗反射表面的研制[J]. *光学学报*, 2001, **21**(8):1001~1003
- 3 M. E. Motamedi, W. H. South, W. J. Gunning. Antireflection surfaces in silicon using binary optics technology [J]. *Appl. Opt.*, 1992, **31**(22):4371~4376
- 4 E. B. Gram, M. D. Moharam, D. A. Pommet. Optimal design for antireflective tapered two-dimensional subwavelength grating structures [J]. *J. Opt. Soc. Am. A*, 1995, **12**(2):330~339
- 5 P. Lalanne. On the effective medium theory of subwavelength periodic structures [J]. *J. Modern Opt.*, 1996, **43**(10):2063~2085
- 6 Gu Peifu, Li Yiyu, Li Mingyu *et al.*. Band structure and light propagation in photonic crystals [J]. *Optical Instruments*, 2005, **27**(3):55~59
顾培夫,厉以宇,李明宇等. 光子晶体中的能带结构及其光的传播[J]. *光学仪器*, 2005, **27**(3):55~59
- 7 Zhao Li, Yu Jianguo, Cheng Bei *et al.*. Preparation and formation mechanisms of monodispersed silicon dioxide spherical particles [J]. *Acta Chemica Sinica*, 2003, **61**(4):562~566
赵 丽,余家国,程 蓓等. 单分散二氧化硅球形颗粒的制备与形成机理[J]. *化学学报*, 2003, **61**(4):562~566
- 8 W. Stober, A. Fink, E. J. Bohn. Controlled growth of monodisperse silica spheres in the micron size range [J]. *Journal of Colloid and Interface Science*, 1968, **26**:62~69
- 9 Fang Jun, Wang Xiufeng, Cheng Bing *et al.*. Preparation of monodispersed SiO₂ particles for assembling colloidal crystals [J]. *Inorganic Chemicals Industry*, 2007, **39**(3):37~39
方 俊,王秀峰,程 冰等. 组装胶体用单分散二氧化硅颗粒的制备[J]. *无机盐工业*, 2007, **39**(3):37~39
- 10 Zhou Qian, Dong Peng, Cheng Bingying. Three-dimensionally ordered self-assembly of SiO₂ colloidal particles [J]. *Chemistry*, 2004, **4**:290~294
周 倩,董 鹏,程丙英. SiO₂ 胶体颗粒的三维有序自组装[J]. *化学通报*, 2004, **4**:290~294
- 11 Xue Jun'ao, Li Zaiqing, Piao Dazhi *et al.*. Optical Radiation Measurement Principles and Methods[M]. Beijing: Measurement Press, 1981. 291~297
薛君敖,李在清,朴大植等. 光辐射测量原理和方法[M]. 北京: 计量出版社, 1981. 291~297