

文章编号:1004-4213(2011)02-0263-4

金属薄膜厚度小于电子自由程对其光反射率的影响

林育琼¹,冯仕猛¹,王坤霞¹,顾俊²,刘少军²

(1 上海交通大学 物理系,上海 200240)

(2 上海神舟新能源发展有限公司,上海 201112)

摘 要:提出了金属薄膜厚度对薄膜中自由电子的平均自由程影响的物理模型,并给出了薄膜中自由电子的平均自由程的修正公式.理论研究表明:当膜厚小于自由电子的平均自由程时,薄膜中电子平均自由程随膜厚的减小而减小;当膜厚大于或等于自由电子的平均自由程时,薄膜中电子的平均自由程与块状材料一样.利用薄膜中电子平均自由程的计算公式,修正了薄膜导电率的基本理论表达式,再利用金属薄膜的反射率与薄膜导电率的关系,得出金属薄膜厚度对其光反射率的影响.计算机模拟表明:当薄膜厚度小于电子自由程时,金属薄膜反射率随薄膜厚度变化而呈非线性关系.

关键词:金属薄膜;反射率;平均自由程;电导率

中图分类号:TG113.22+4; O484

文献标识码:A

doi:10.3788/gzxb20114002.0263

0 引言

金属薄膜作为一种中性反射膜,一般都具有较大的消光系数,当光束由空气入射到金属表面时,进入金属内部的光振幅迅速衰减,使得进入金属内部的光能相应减少,而反射光能增加.消光系数越大,光振幅衰减越迅速,进入金属内部的光能越少,反射率越高.

早期研究中,把金属薄膜当成为块状材料,没有考虑金属薄膜不同于块状材料的表面散射、接触散射、电子隧道等特性.薄膜的应用^[1]逐渐扩大,人们意识到传统的理论已经不能解决当前的问题,近年来,在许多研究中,已考虑了表面散射、接触散射、电子隧道等特性^[2-9]. Fuchs 及 Sondheimer(F-S)在玻耳兹曼输运方程的基础上,用表面散射效应来说明薄膜电性能随膜厚的变化,但没有考虑晶界散射;IVlayadas 和 Shatzkes 考虑了晶界散射,但考虑的是膜平面方向上的晶界散射;范平等在 F-S 理论基础上,考虑表面和晶界的散射,特别是膜厚方向的晶界散射,提出电导率与厚度的关系式,对研究薄膜导电率的尺寸效应是非常有意义的^[5,9].

以前的研究中没有综合考虑薄膜边界对电子自由程的影响,使处理过程过于简单.本文根据薄膜厚度对电子自由程影响的物理模型,结合已有理论系

统研究膜厚对电导率的影响,进而给出金属薄膜反射率与厚度的关系,对研究金属薄膜的反射率是有意义的.

1 金属薄膜中电子的自由程修正(薄膜厚度与自由程修正)

金属电阻率的大小是由金属中自由电子的平均自由程的长短来决定的.因此,金属中自由电子的平均自由程越短,金属材料的电阻率越大;反之,金属中自由电子的平均自由程越长,金属材料的电阻率越小.如果金属薄膜的膜厚小于某一个值时,薄膜的厚度将对自由电子的平均自由程产生影响,从而影响薄膜材料的电阻率.图 1 给出了说明薄膜尺寸效应的示意图.图中假设薄膜的厚度为 d , OA 的长度等于金属块状材料中自由电子的平均自由程 λ 的二分之一,即: $OA = \lambda/2$. 以 OA 为半径作一个自由程

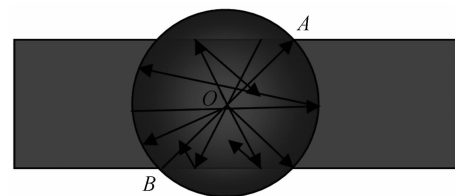


图 1 薄膜厚度对电子自由程影响的结构模型

Fig. 1 The physical model to show metal film thickness influences electrical mean free path

基金项目:中国航天科技集团公司航天科技创新基金资助

第一作者:林育琼(1987-),女,硕士研究生,主要研究方向为太阳能电池、金属薄膜、液晶. Email:libertyetal@gmail.com

导师(通讯作者):冯仕猛(1964-),男,副教授,博士,主要研究方向为薄膜光学、液晶光学及光电器件. Email:smfeng@sjtu.edu.cn

收稿日期:2010-08-11;修回日期:2010-09-27

球. 显然, 由 B 点出发的自由电子运动到薄膜表面并同其发生碰撞时所走过的距离小于自由电子的平均自由程 λ .

按照图 1 中的模型进行理论处理. 如果薄膜厚度大于电子自由程, 则自由程球的体积为

$$V = \frac{4}{3}\pi\left(\frac{\lambda}{2}\right)^3 \quad (1)$$

式中 λ 为块状材料中电子的自由程. 如果薄膜厚度小于电子的自由程 (如图 1), 薄膜空间和自由程重叠区的体积为

$$V' = \frac{4}{3}\pi\left(\frac{\lambda}{2}\right)^3 - \frac{4}{3}\pi\left[\left(\frac{\pi}{2}\right)^3 - \frac{3d\lambda^2}{16} + \frac{d^3}{4}\right] = \frac{4}{3}\pi\left(\frac{3d\lambda^2}{16} - \frac{d^3}{4}\right) \quad (2)$$

式中 d 是薄膜的厚度. 实际上这部分体积也是电子自由运动的空间. 显然, 两部分体积之比, 再开三次方可看成电子的自由程之比

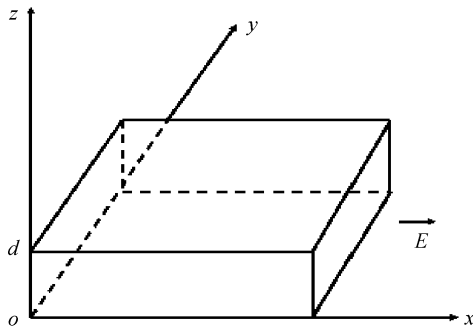
$$\gamma = \sqrt[3]{\frac{V'}{V}} = \sqrt[3]{\frac{d}{2\lambda}\left(3 - \frac{d^2}{\lambda^2}\right)} \quad (3)$$

式中 γ 定义为自由电子在该空间总的自由程和块状材料中总自由程之比. 也就是说, 薄膜中自由电子自由程分别为

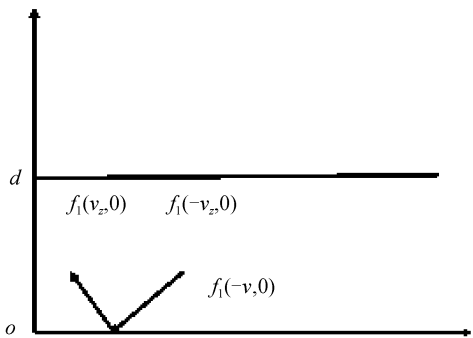
$$\lambda(d) = \begin{cases} \gamma = \sqrt[3]{\frac{V'}{V}} = \sqrt[3]{\frac{d}{2\lambda}\left(3 - \frac{d^2}{\lambda^2}\right)} & d < \lambda \\ \lambda & d \geq \lambda \end{cases} \quad (4)$$

式中 λ 是块状材料自由电子的自由程, $\lambda(d)$ 为薄膜材料自由程.

根据薄膜经典模型^[9] (见图 2), 得到电导率



(a) The film model in the electric field



(b) Boundary scattering model of electron in the film

图 2 传统模型中, 薄膜及自由电子示意图

Fig. 2 Film and free electronic schematic in traditional model

为^[9]

$$\sigma = \sigma_{\infty} \left\{ 1 - \left(\frac{1}{2} + \frac{3}{4} \frac{\lambda}{d} \right) \left[1 - p \exp \left(-\frac{\zeta}{\lambda} d \right) \right] \cdot \exp \left(-\frac{d}{\lambda} \right) \right\} \quad (5)$$

式中 σ 表示连续金属薄膜的电导率, σ_{∞} 表示块状金属的电导率, ζ 与电子在 λ 路程中的穿透率有关; d 表示膜厚, λ 表示费米能级的电子具有的平均自由程. 则薄膜中电导率修正为

$$\sigma = \sigma_{\infty} \left\{ 1 - \left(\frac{1}{2} + \frac{3}{4} \frac{\lambda}{\gamma d} \right) \left[1 - p \exp \left(-\frac{\zeta \gamma}{\lambda} d \right) \right] \cdot \exp \left(-\frac{d \gamma}{\lambda} \right) \right\}$$

$$\gamma = \sqrt[3]{\frac{V'}{V}} = \sqrt[3]{\frac{d}{2\lambda}\left(3 - \frac{d^2}{\lambda^2}\right)} \quad (6)$$

考虑到金属中折射率 \tilde{n} 为复数

$$\tilde{n} = n + i\chi$$

式中

$$n = \text{real} \{ \tilde{n} \} = \sqrt{\frac{1}{2} \epsilon_r \left\{ \left[1 + \left(\frac{\sigma}{\omega \epsilon_r \epsilon_0} \right)^2 \right]^{1/2} + 1 \right\}} \quad (7)$$

$$\chi = \text{imag} \{ \tilde{n} \} = \sqrt{\frac{1}{2} \epsilon_r \left\{ \left[1 + \left(\frac{\sigma}{\omega \epsilon_r \epsilon_0} \right)^2 \right]^{1/2} - 1 \right\}} \quad (8)$$

式中 ϵ_r 表示一般所说的相对介电常量, $\omega = 2\pi c/\lambda_0$, λ_0 表示真空中的波长, c 表示真空中的波速. 式中 n 为折射率的实部, χ 为消光系数. 把式 (7) 和 (8) 代到薄膜反射率的计算公式中, 其反射率与膜厚的关系为

$$R = \frac{(n-1)^2 - \chi^2}{(n+1)^2 + \chi^2} \quad (9)$$

式中 R 为强度反射率.

2 讨论

以金薄膜为例, 对各个量之间的关系进行讨论. 实际应用中 λ 、 σ_{∞} 基于实验结果估算得出, p 、 ζ 则根据实验结果拟合给出. 对于金块状材料的自由电子平均自由程 $\lambda = 38 \text{ nm}$ ($T = 300 \text{ K}$), $\zeta = 0.025$, $p = 0.5373$, $\sigma_{\infty} = 1/4.41$.

2.1 金薄膜自由电子平均自由程和膜厚的关系

利用式 (4) 和计算机程序, 可以给出薄膜厚度与自由程的关系曲线, 如图 3. 从图 3 中看出, 如果金属薄膜厚度小于薄膜厚度时, 薄膜中电子自由程将变小, 以这一结论为基础推导的电阻率与实验测量的电导率基本吻合.

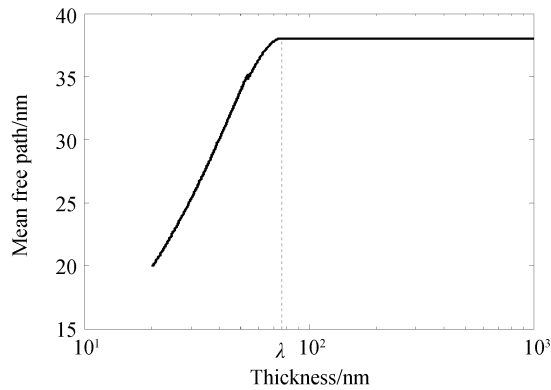


图3 膜厚对电子平均自由程的影响

Fig. 3 Effects of film thickness on electrical mean free path

2.2 金薄膜反射率与膜厚的关系

薄膜厚度对电子平均自由程有一定的影响,它们的变化将影响金薄膜的反射率.在室温下($T=300\text{ K}$),根据式(6)和式(9)得到金薄膜反射率随入射波波长和厚度的关系如图4.

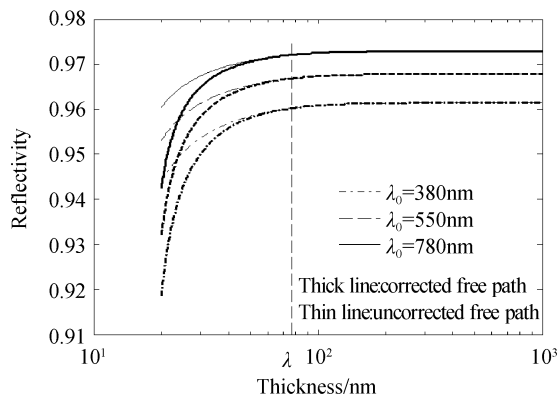


图4 光波不同时,膜厚对反射率的影响

Fig. 4 Effects of film thickness on reflectivity at different wavelengths

从图4中可以看出,对同一波长的入射光,在薄膜厚度相同时,经过修正后获得的理论反射率比没有修正时获得的理论反射率低,如 $\lambda_0=550\text{ nm}$, $d=35\text{ nm}$ 时,修正前 $R=0.9586$,修正后 $R=0.9523$.另外,对于同一波长的入射光,当膜厚很小时,反射率随膜厚的增加而增加;当膜厚大约大于150nm左右时,反射率的值随膜厚的变化几乎保持不变.

3 结论

通过研究薄膜厚度对电子平均自由程的影响,给出了薄膜厚度影响电子平均自由程的物理模型,并精确地给出了当薄膜厚度小于电子平均自由程时电子平均自由程的计算公式.理论研究表明:当膜厚

小于自由电子平均自由程时,薄膜中自由电子平均自由程随膜厚的减小而减小,当膜厚大于或等于块状材料中电子平均自由程时,薄膜中电子平均自由程与块状材料一样.理论研究还表明:当薄膜厚度小于电子自由程时,薄膜越厚,反射率越高.

参考文献

- [1] HU Xiao-cao, DIAO Xun-gang, HAO Lei. Preparation of large area $\text{TiO}_2/\text{Ag}/\text{Ti}/\text{TiO}_2$ multilayers on flexible substrate and its optoelectronic and infrared emission properties [J]. *Chinese Journal of Rare Metals*, 2008, **32**(3): 300-305.
胡小草,刁训刚,郝雷.大面积柔性基底 $\text{TiO}_2/\text{Ag}/\text{Ti}/\text{TiO}_2$ 多层膜的制备及其光电和红外发射特性[J]. *稀有金属*, 2008, **32**(3): 300-305.
- [2] CLARYSSE T, HOFLIJK I, ZHANG W, *et al.* Metal film characterization with qualified spreading resistance [J]. *Journal of Vacuum Science & Technology B: Microelectronics and Nanometer Structures*, 2004, **22**(1): 444-449.
- [3] TAMIRISA P, LEVITIN G, KULKARNI N, *et al.* Plasma etching of copper films at low temperature[J]. *Microelectronic Engineering*, 2007, **84**(1): 105-108.
- [4] ZHANG W, BRONGERSMA S, CLARYSSE T, *et al.* Surface and grain boundary scattering studied in beveled polycrystalline thin copper films [J]. *Journal of Vacuum Science & Technology B: Microelectronics and Nanometer Structures*, 2004, **22**(4): 1830-1833.
- [5] FAN Ping. Electric conductivity characteristics of ultrathin metallic films[J]. *Acta Metallurgica Sinica*, 1999, **35**(3): 261-264.
范平.超薄金属膜的电导特性[J]. *金属学报*, 1999, **35**(3): 261-264.
- [6] WANG De-fei, QI Wen-zong, GUO Chun-feng. Simulation study of thermal and mechanical effect on metal film irradiated by ultra-fast laser pulse[J]. *Acta Photonica Sinica*, 2008, **37**(11): 2172-2176.
王德飞,齐文宗,郭春风.超快脉冲激光辐照金属薄膜热-力效应的模拟研究[J]. *光子学报*, 2008, **37**(11): 2172-2176.
- [7] WU Ying-cai, GU Zheng. Research on the optimum thickness of metallic thin film utilized to excite surface plasmon resonance[J]. *Acta Physica Sinica*, 2008, **57**(4): 2295-2299.
吴英才,顾铮.激励表面等离子共振的金属薄膜最佳厚度分析[J]. *物理学报*, 2008, **57**(4): 2295-2299.
- [8] ZHAO Gang, HAO Qiu-long, QI Wen-zong, *et al.* Thermal behavior of thin metal films irradiated by ultra-short pulse laser[J]. *Acta Photonica Sinica*, 2007, **36**(1): 9-12.
赵刚,郝秋龙,齐文宗,等.超短脉冲激光辐照下金属薄膜的热行为[J]. *光子学报*, 2007, **36**(1): 9-12.
- [9] FAN Ping, LAI Guo-yan. Calculation of metallic films resistivities[J]. *Vacuum Science and Technology*, 1999, **19**(6): 445-451.
范平,赖国燕.连续金属薄膜的电阻率研究[J]. *真空科学与技术*, 1999, **19**(6): 445-451.

Effects of Film Thickness Less than Electrical Mean Free Path on Reflectivity

LIN Yu-qiong¹, FENG Shi-meng¹, WANG Kun-xia¹, GU Jun¹, LIU Shao-jun¹

(1 *Department of Physics, Shanghai Jiao Tong University, Shanghai 200240, China*)

(2 *Shanghai Shenzhou New Energy Co., Ltd, Shanghai 201112, China*)

Abstract: A physical model was proposed to illustrate the influence of metal film thickness on electrical mean free path, and the formula of electrical mean free path was modified based on this model. The results demonstrate that the electrical mean free path decreases with film thickness decreasing, when the film thickness is less than the mean free path. Otherwise it is a constant as bulk material. The film conductivity expression was also modified based on this formula. Combining with the relationship between metal films' conductivity and reflectivity, the formula of thin film conductivity with different thickness was put forward. Computer simulations show that when the film thickness is less than the electrical mean free path, the changes of metal film reflectivity are nonlinear.

Key words: Metal thin film; Reflectivity; Mean free path; Conductivity