

## Способ создания просветляющих покрытий для пленок ИТО

© Л.К. Марков, А.С. Павлюченко, И.П. Смирнова

Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе Российской академии наук,  
194021 Санкт-Петербург, Россия

E-mail: l.markov@mail.ioffe.ru

(Получена 19 июня 2018 г. Принята к печати 2 июля 2018 г.)

Рассмотрен способ создания прозрачных проводящих пленок оксида индия и олова для применений, предполагающих большие значения плотностей токов. Такие пленки должны сочетать в себе хорошую поверхностную проводимость с повышенным коэффициентом пропускания излучения в широком диапазоне длин волн. Предлагается двухстадийный процесс создания покрытий: на первом этапе формируется плотная пленка оксида индия и олова с хорошей электрической проводимостью, а в дальнейшем наносится дополнительный просветляющий слой этого же материала. Исследовались возможные способы оптимизации свойств таких, дополнительных, пленок оксида индия и олова, полученных путем создания наноструктурированных самоорганизующихся покрытий на поверхности плотных пленок. Показано, что наилучший вывод света в широком диапазоне длин волн обеспечивает метод комбинированного нанесения пленок, заключающийся в создании самоорганизующихся наноструктурированных покрытий методом электронно-лучевого испарения на горячую подложку и дальнейшем заращивании пустот методом магнетронного распыления при комнатной температуре. Поскольку оптические свойства получаемых просветляющих покрытий зависят от соотношения масс вещества, осаждаемых на каждой стадии их нанесения, метод позволяет оптимизировать свойства пленок, исходя из задач, поставленных сферой их применения. Компьютерное моделирование характера распределения материала в структуре исследованных покрытий подтверждает способность метода комбинированного нанесения пленок создавать наиболее плавный характер изменения эффективного показателя преломления в структуре покрытия, приводящий к максимальному выводу света оптического диапазона.

DOI: 10.21883/FTP.2019.02.47096.8940

### 1. Введение

Бурное развитие в последние десятилетия приборов, предназначенных для визуализации информации, а также для эффективного преобразования электрической энергии в оптическое излучение и обратно повлекло за собой необходимость совершенствования технологии получения используемых в них пленок прозрачных проводящих оксидов.

Для излучения, не являющегося монохроматическим или падающего на пленку под различными углами (что характерно для большинства приборов, использующих пленки прозрачных проводящих оксидов), когда невозможно воспользоваться преимуществом конструктивной интерференции, достижение максимального вывода света из образца с пленкой оксида индия и олова (ИТО) требует минимизации френелевского отражения на ее границах. Так, например, первоначально предлагалось текстурирование поверхности пленки посредством маскирования различными способами и дальнейшего травления [1,2].

Один из подходов создания структурированных проводящих пленок на основе ИТО был реализован добавлением в материал пленки мелкодисперсных частиц  $\text{SiO}_2$  [3,4] или оксида сурьмы и олова (antimony-doped tin oxide, или АТО) [5]. Таким методом можно изменить эффективный показатель преломления материала и создавать многослойные покрытия.

Задача получения покрытия с наименьшей шероховатостью для использования его в составе контакта лазера

поверхностного излучения с вертикальным объемным резонатором (VCSEL) была решена авторами работы [6] также путем создания многослойной пленки ИТО. Такой подход позволил получить покрытие со свойствами, которые невозможно достичь для однослойных пленок.

В то же время интересной особенностью материала ИТО является зависимость структуры его пленок от способов и режимов их получения. В работах [7–9] предлагается использовать метод осаждения материала ИТО при наклонном падении [10] для создания пленок с различным значением показателя преломления.

Другую возможность модификации свойств материала представляет его склонность при определенных условиях нанесения к формированию кристаллов вытянутой формы с образованием самоорганизующихся наноразмерных структур в виде „леса“ из „нанонитей“ (nanowires, nanowhisker, nanorods) [11–16]. Образование кристаллов нитевидной формы объясняется возможностью при определенных условиях осуществить их рост по механизму пар-жидкость-кристалл (ПЖК), или vapor-liquid-solid (VLS) в англоязычном варианте [17,18]. В этом случае рост кристаллов идет по границе раздела кристалл-жидкость из капель расплава нанометрового размера. При этом в качестве катализатора процесса могут быть использованы различные наночастицы (например, золота, никеля или графита). Однако использование частиц катализатора для формирования прозрачных покрытий сопряжено с риском ухудшения их оптических свойств. В то же время при определенных режимах нанесения материала оксида индия и олова существует

возможность реализовать рост кристаллов нитевидной формы по механизму ПЖК без внешнего катализатора.

Формирование оптических проводящих покрытий, содержащих кристаллы вытянутой формы, с целью улучшения характеристик оптоэлектронных приборов продемонстрировано в работах [19,20]. Позитивный эффект, возникающий при применении таких самоорганизующихся пленок ИТО, связывается авторами с градиентным характером показателя преломления пленки (показатель преломления такой пленки имеет градиент в направлении, перпендикулярном плоскости подложки). Такие, градиентные, покрытия [21–26] известны как эффективный способ борьбы с френелевским отражением на границе двух сред в случае, когда излучение не является монохроматическим или падает на границу под разными углами.

Формирование самоорганизующихся наноструктурированных пленок ИТО, состоящих из кристаллов вытянутой формы, наблюдалось нами при осаждении материала на нагретые до температур выше  $400^{\circ}\text{C}$  подложки как методом электронно-лучевого испарения, так и магнетронного распыления [27]. При таких температурах за образование кристаллов вытянутой формы также отвечает механизм ПЖК. Несмотря на то что формы кристаллов, получаемых методом электронно-лучевого испарения и магнетронного распыления, слегка отличаются, характер покрытия имеет одинаковые черты: в обоих случаях в нем присутствуют вытянутые кристаллы с пустотами между ними. Зависимость структуры пленок ИТО, наносимых методом магнетронного распыления при повышенных температурах подложки, от технологических параметров процесса их нанесения исследовалась авторами работы [28]. В работе [29] мы предложили оригинальный комбинированный метод нанесения пленок, заключающийся в создании самоорганизующихся наноструктурированных покрытий методом электронно-лучевого испарения на горячую подложку на первой стадии и дальнейшем зарастивании пустот методом магнетронного распыления при комнатной температуре — на второй. Наши дальнейшие исследования показали, что если наноструктурированное покрытие на первой стадии получено методом магнетронного распыления на горячую подложку, то осаждение материала на второй стадии также приводит к зарастиванию пустот в пленке. Таким образом, комбинацией методов вакуумного напыления при различных температурах подложки могут быть получены пленки ИТО с различными структурными особенностями и соответственно оптическими свойствами. Поскольку размеры структурных неоднородностей получаемых покрытий составляют, как правило, десятки нанометров, к оценке эффективного показателя преломления данной пленки можно подойти с помощью модели эффективной среды [30]. Оценки эффективного показателя преломления, сделанные в рамках геометрии Оделевского [31], приводят к сопоставимым с экспериментом результатам [29]. Таким образом, получение материала с требуемым значением эффективного показателя преломления может быть

достигнуто изменением соотношения масс вещества, осаждаемого на каждой из указанных выше стадий его нанесения.

При детальном рассмотрении структуры напыляемых на первой стадии пленок оказывается, что они, так же как и рассмотренные в работах [19,20] пленки, характеризуются градиентом плотности вещества и соответственно эффективного показателя преломления в направлении, перпендикулярном плоскости подложки.

В работе [32] с помощью компьютерного моделирования среды по наблюдающимся в эксперименте спектральным зависимостям коэффициентов пропускания и отражения света исследовались профили распределения вещества и значения эффективного показателя преломления в наноструктурированных самоорганизующихся пленках ИТО, полученных методом электронно-лучевого испарения на нагретые до температур выше  $400^{\circ}\text{C}$  подложки. Было показано, что градиентный характер таких покрытий обеспечивает хорошее интегральное (в широком диапазоне длин волн видимого излучения) прохождение света через образцы с пленкой на стекле. Также обсуждалось, что нанесением дополнительного количества материала методом магнетронного распыления при комнатной температуре можно добиться изменения профиля эффективного показателя преломления в них. При этом проводившиеся эксперименты показали, что для обеспечения эффективного вывода света из среды с показателем преломления, близким к 1.5 (стекло), на воздух дополнительной модификации профиля показателя преломления не требуется.

В то же время на практике существует необходимость создания проводящих покрытий, обеспечивающих вывод света из сред с другим показателем преломления. Хорошим примером являются светодиодные кристаллы на основе GaN, чей показатель преломления составляет величину, близкую к 2.5 для синего света (собственное излучение светодиода). Кроме того, как обсуждалось в работе [32], самоорганизующиеся градиентные покрытия имеют относительно плотный зародышевый слой, являющийся основой для роста нитевидных кристаллов различной высоты. Согласно нашим оценкам, зародышевый слой сам имеет градиентный характер, вследствие того что состоит из зерен различного размера, и его удельная плотность меньше плотности материала ИТО без пустот. После образования зародышевого слоя и формирования на его основе слоя, состоящего из кристаллов нитевидной формы достаточной толщины, последние все в большей степени затеяют собой зародышевый слой, и, как следствие, основной рост пленки заключается в дальнейшем росте нитевидных кристаллов. При этом в силу преимущественной ориентации их в направлении, перпендикулярном плоскости подложки, и, следовательно, незначительной вероятности формирования путей для проведения электрического тока в латеральном направлении, вкладом кристаллов нитевидной формы в поверхностную проводимость пленок можно пренебречь. Таким образом, электрические характеристики покрытия будут определяться преимущественно свойствами

Состав исследуемых образцов

№ образца	Серия образца	Толщина плотного слоя, нм	Толщина слоя электронно-лучевого испарения (в эквиваленте плотной пленки), нм	Толщина дополнительного слоя магнетронного распыления (в эквиваленте плотной пленки), нм
1	I	220	—	—
2	I	220	50	—
3	I	220	120	—
4	II	100	—	—
5	II	100	50	—
6	II	100	120	—
7	II	100	50	70
8	II	100	50	100
9	II	100	50	170

зародышевого слоя, толщина и проводимость которого могут быть недостаточны для применения в приборах, требующих больших плотностей тока. Поэтому, с нашей точки зрения, для сильноточных применений наиболее перспективным будет создание покрытий в 2 этапа: на первом формируется плотная пленка с хорошей электрической проводимостью необходимой толщины, а в дальнейшем наносится дополнительный слой с целью минимизации потерь, связанных с френелевским отражением на внешней границе покрытия. В настоящей работе мы исследуем возможные способы оптимизации свойств таких пленок ИТО, полученных путем создания наноструктурированных самоорганизующихся покрытий на поверхности плотных пленок.

## 2. Результаты эксперимента и их обсуждение

В настоящей работе формирование наноструктурированных самоорганизующихся пленок ИТО, имеющих в составе вытянутые нитевидные кристаллы, проводилось методом электронно-лучевого испарения при нагреве подложки до температуры 450°C с последующим напуском в вакуумную камеру азота ОСЧ до давления, близкого к атмосферному (~800 мбар) и дальнейшей выдержкой образца в атмосфере азота 10 мин без выключения нагрева. Скорость осаждения материала составляла ~10 нм/мин. Технология нанесения таких пленок подробно описана в работе [29]. Поскольку контроль толщины пленок проводился в процессе их нанесения с помощью кварцевого датчика, измеряющего массу наносимого материала, а калибровка датчика осуществлялась на сплошном плотноупакованном материале, реальная толщина пленок, содержащих пустоты, отличалась от измеренной в процессе нанесения. Как правило, общая толщина наносимых данным методом пленок превосходила плотноупакованные пленки в несколько раз. В дальнейшем мы будем для простоты изложения количество материала ИТО, наносимое в одном процессе напыления пленки, характеризовать толщиной пленки без пустот,

содержащей такое же количество материала. В этом случае будет говориться о количестве материала „в эквиваленте плотной пленки“. Таким образом, фраза: „была нанесена пленка толщиной  $X$  нм в эквиваленте плотной пленки“ означает, что на подложку было осаждено такое же количество материала, как и при нанесении плотноупакованной пленки толщиной  $X$  нм.

Осаждение материала методом магнетронного напыления с целью дальнейшего зарастивания пустот в наноструктурированных пленках проводилось со скоростью 6–8 нм/мин при комнатной температуре с последующим отжигом образца также при 450°C в атмосфере азота при давлении ~800 мбар в течение 10 мин. Детали этой технологии также освещены в [29].

Изучение оптических характеристик пленок на стекле проводилось на тестовых образцах, представляющих собой покровные стекла толщиной 0.17 mm, на одну сторону которых наносились исследуемые пленки. Спектры пропускания и отражения образцов исследовались на спектро радиометре Cary 430 производства фирмы Agilent. Излучение падало на образец со стороны пленки, нормально к его поверхности.

Для исследования способов снижения френелевского отражения на внешней границе пленки ИТО был изготовлен ряд образцов, представляющих собой пленки этого материала толщиной 220 нм (серия I) и 100 нм (серия II) на стеклянных подложках, полученные методом магнетронного распыления в разряде газовой смеси аргона с кислородом при комнатной температуре. В дальнейшем на поверхности этих пленок создавались слои различной структуры для уменьшения френелевского отражения на внешней границе покрытия (см., например, рис. 1). Плотность исходных пленок соответствует плотности плотноупакованного материала, и они характеризуются наиболее ровной, неструктурированной, наружной границей, что приводит к выраженному интерференционному характеру спектров пропускания и отражения образцов (кривые 1 на рис. 2 и кривые 4 на рис. 3). Исходному образцу серии I был присвоен номер 1, а исходный образец серии II получил но-

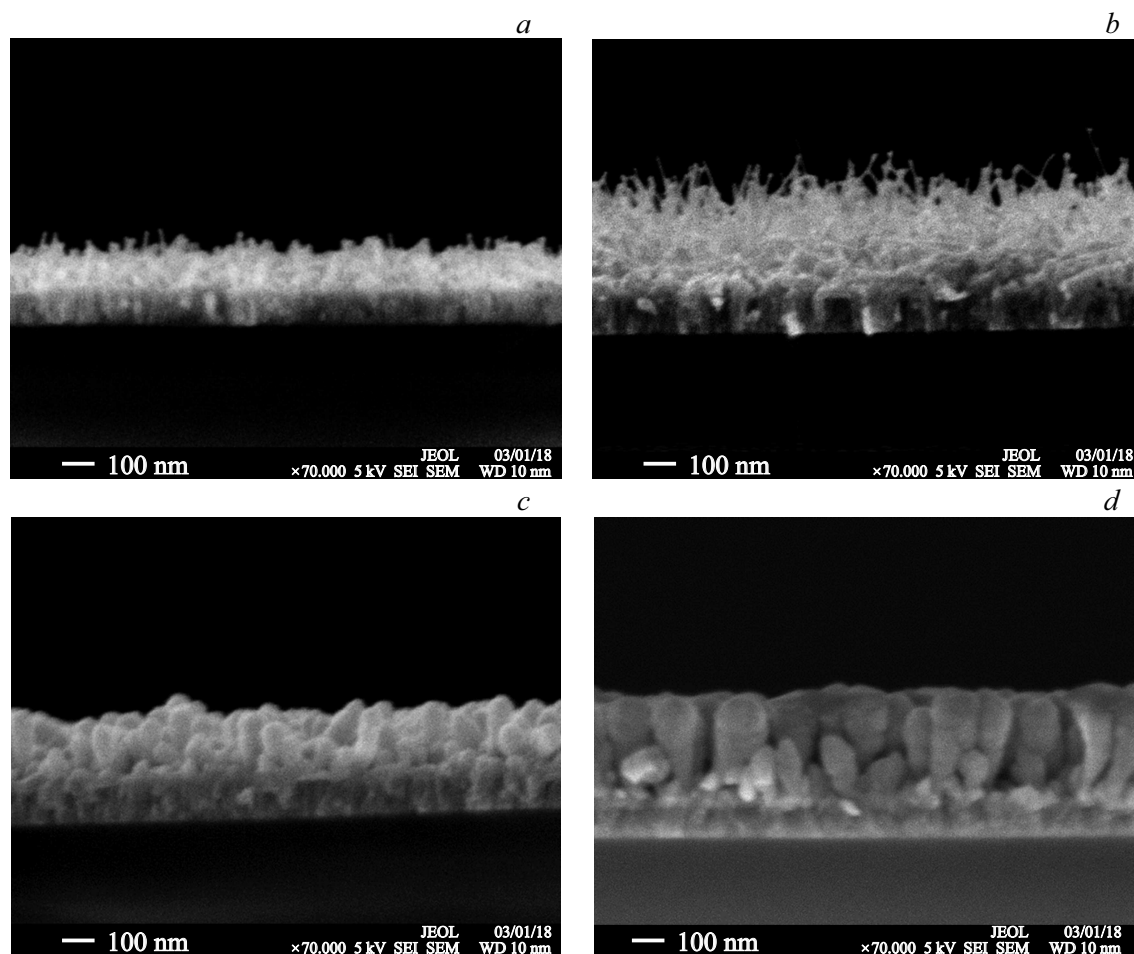
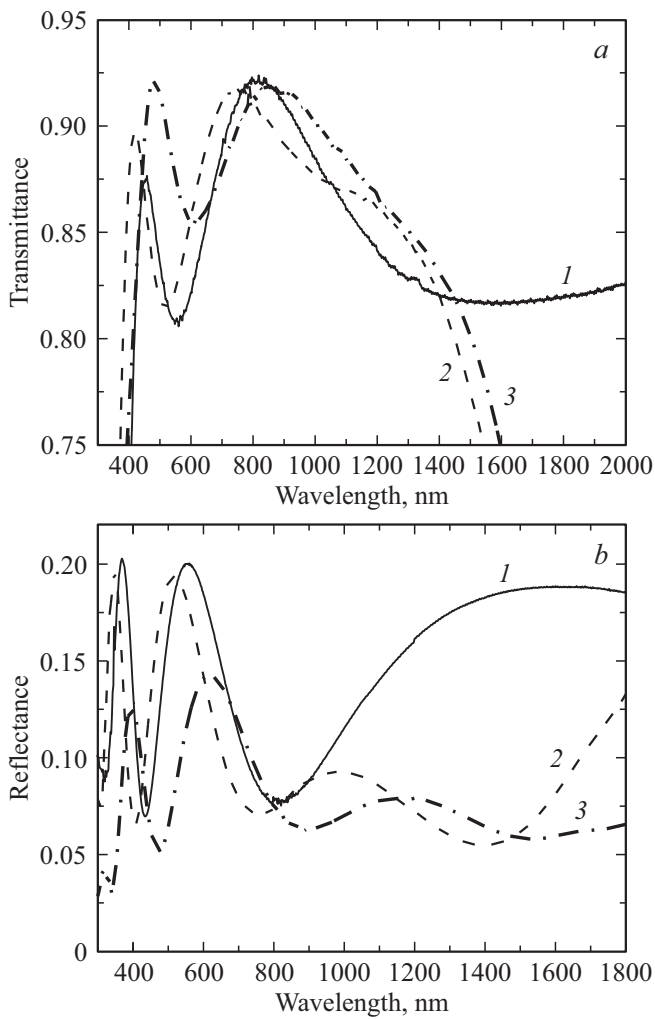


Рис. 1. РЭМ-изображения пленок ИТО образцов 5 (a), 6 (b), 7 (c) и 9 (d).

мер 4. Данные по толщинам и методу нанесения слоев всех рассматриваемых в настоящей работе образцов приведены в таблице. Рассмотрим, как при помощи нанесения дополнительного слоя ИТО можно добиться существенного просветляющего эффекта и оптимизировать оптические характеристики прозрачного проводящего покрытия. Для этого на полученные образцы серий I и II методом электронно-лучевого испарения наносились самоорганизующиеся градиентные покрытия толщиной 50 и 120 нм в эквиваленте плотной пленки согласно описанному выше методу. Образцы серии I со слоями, полученными методом электронно-лучевого напыления, получили номера 2, 3, а серии II — 5, 6 соответственно (см. таблицу). Характер получаемого покрытия проиллюстрирован на рис. 1, a и b, где приведено полученное с помощью растрового электронного микроскопа изображение образцов 5 и 6 (серии II). Как видно из рисунка, оба образца состоят из плотной исходной пленки, на поверхности которой сформирован слой вытянутых кристаллов различной высоты.

Спектры пропускания и отражения образцов 2 и 3 серии I с дополнительно нанесенными слоями ИТО толщиной 50 и 120 нм в эквиваленте плотной пленки

приведены на рис. 2. Там же для сравнения приведены спектры исходной плотной пленки толщиной 220 нм. Как видно из рисунка, все образцы с дополнительным покрытием характеризуются уменьшением коэффициента пропускания в инфракрасной области спектра, что, как обсуждалось в работе [32], связано с резонансными эффектами на элементах наноструктуры [33,34]. Однако в видимой части спектра и в области ближнего ИК диапазона этим методом можно достичь значительного просветляющего эффекта. Так, интегральное пропускание света образцом с более толстым дополнительным слоем (120 нм в эквиваленте плотной пленки) для волн с длиной менее 1400 нм существенно превосходит пропускание света исходным образцом (рис. 2, a). Также, согласно данным рис. 2, b, образец с дополнительным слоем 120 нм демонстрирует значительно меньшее отражение практически во всем исследуемом диапазоне длин волн. В то же время эффект от нанесения более тонкой дополнительной пленки (50 нм в эквиваленте плотной пленки), характеризующейся менее развитой структурой нанонитей, не столь выражен. При этом спектры пропускания и отражения обоих образцов обнаруживают интерференционный характер. Поскольку, как

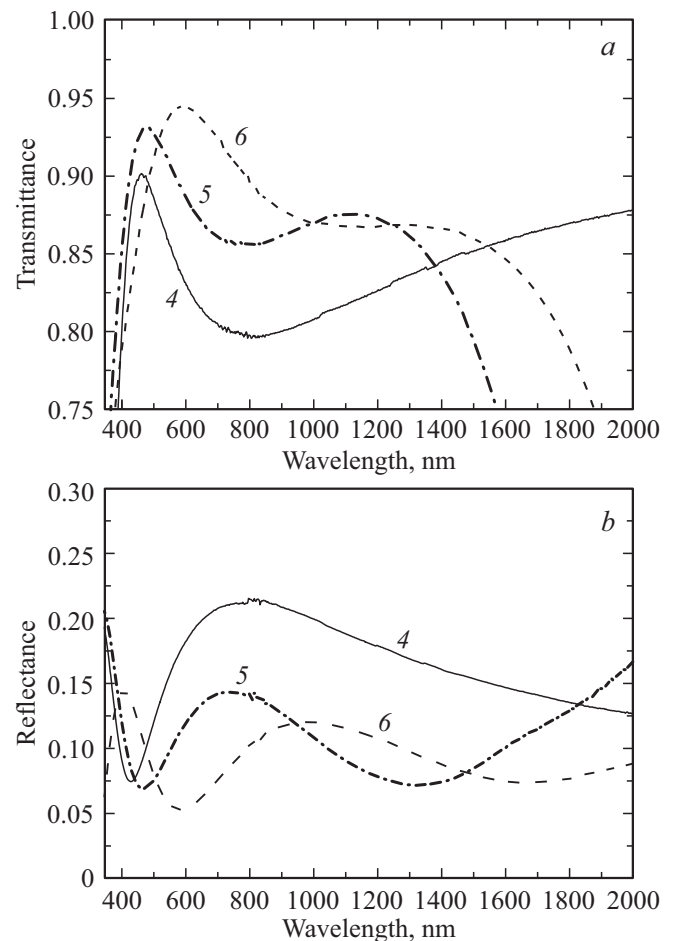


**Рис. 2.** Спектры пропускания (а) и отражения (b) образцов ИТО с плотноупакованным слоем толщиной 220 нм (1) и дополнительными самоорганизующимися градиентными слоями толщиной 50 нм (2) и 120 нм (3) в эквиваленте плотной пленки.

было упомянуто выше и обсуждалось в работе [32], даже тонкая (50 нм в эквиваленте плотной пленки) дополнительная пленка представляет собой достаточно хорошо организованное градиентное покрытие, резонно предположить, что причиной наблюдаемой интерференции в образцах является контраст показателя преломления на границе исходной и дополнительных пленок. По всей видимости, по мере увеличения толщины дополнительной пленки одновременно с ростом кристаллов нитевидной формы происходит частичное уплотнение ее зародышевого слоя и соответственно уменьшение контраста показателей преломления на границе первой, плотной, и дополнительной, просветляющей, пленок. По поведению спектров пропускания и отражения образцов (рис. 2) видно, что более толстый слой градиентного покрытия способствует лучшему выводу света из образца. Однако этот эффект исчерпывается с увеличением толщины дополнительной пленки, поскольку, как мы обсуждали

выше, при достаточно развитой структуре нитевидных кристаллов они затеяют поверхность зародышевого слоя и дальнейший рост пленки идет в основном по механизму пар-жидкость-кристалл с увеличением длины нитевидных кристаллов. В силу ненулевого поглощения света в материале ИТО дальнейшее увеличение толщины дополнительного покрытия с целью просветления исходной пленки становится нецелесообразно из-за возрастания суммарного поглощения света в образце.

Аналогичный по характеру результат наблюдается при нанесении вышеописанным методом дополнительного покрытия на образцы серии II, имеющие более тонкий (100 нм) исходный слой плотного материала. На рис. 3 приведены спектры пропускания исходного образца (4) и образцов с дополнительными самоорганизующимися градиентными слоями толщиной 50 и 120 нм (образцы 5 и 6 соответственно) в эквиваленте плотной пленки. Согласно нашим экспериментам, дальнейшее увеличение толщины дополнительного слоя также не приводило к увеличению пропускания света образцом. Как видно из рисунка, нанесение дополнительного самоорганизующе-

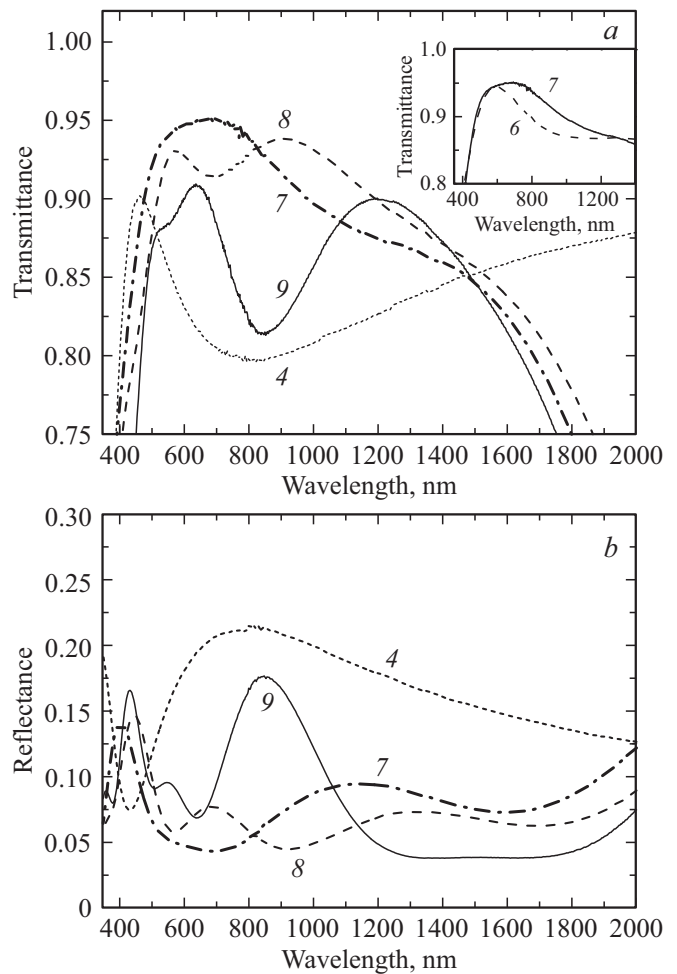


**Рис. 3.** Спектры пропускания (а) и отражения (b) образцов ИТО с плотноупакованным слоем толщиной 100 нм (4) и дополнительно нанесенными на него градиентными слоями толщиной 50 нм (5) и 120 нм (6) в эквиваленте плотной пленки.

гося слоя ИТО приводит к заметному просветляющему эффекту, более значительному в случае образца 6. Однако оба образца демонстрируют интерференционный характер спектров пропускания и отражения, что оставляет возможность дальнейшей оптимизации свойств покрытия с точки зрения увеличения интегрального вывода излучения из образца.

Как показали наши исследования, изменить характер пропускания света образцами можно, применяя обсуждавшийся выше способ заравнивания пустот методом магнетронного распыления. Рассмотрим основы предлагаемого подхода на примере образцов серии II, имеющих слой 1, состоящий из плотной пленки ИТО толщиной 100 нм на стекле. В дальнейшем на все образцы был нанесен слой 2 естественного градиентного покрытия толщиной 50 нм в эквиваленте плотной пленки (такая комбинация слоев соответствовала образцу 5). Как мы обсуждали выше на примере образца 5, такой дополнительный слой толщиной 50 нм в эквиваленте плотной пленки обеспечивает минимальное поглощение света, но недостаточен с точки зрения создания эффективного просветления плотной пленки ИТО. На полученные образцы методом магнетронного распыления при комнатной температуре подложки наносилось различное количество материала ИТО по описанной выше технологии, что проводило к заравниванию пустот в слое 2 и, следовательно, изменению характера распределения материала в нем. Таким образом были изготовлены 3 образца на стеклянных подложках со следующей последовательностью слоев: плотная пленка ИТО толщиной 100 нм, на поверхности которой методом электронно-лучевого испарения нанесена пленка естественного градиентного покрытия толщиной 50 нм в эквиваленте плотной пленки, с дальнейшим заравниванием пор в ней нанесением слоя материала методом магнетронного распыления при комнатной температуре толщиной 70, 100 и 170 нм в эквиваленте плотной пленки (см. таблицу, образцы 7, 8 и 9 соответственно). На рис. 1, *c* и *d* приведены изображения образцов 7 и 9, полученные с помощью растрового электронного микроскопа. На обоих изображениях хорошо различимы области исходной плотной пленки и созданного на ее основе дополнительного покрытия, состоящего из нитевидных кристаллов, покрытых слоем материала разной толщины. При этом в случае образца 9, как наиболее плотного из исследованных образцов, в структуре дополнительного покрытия становятся заметны частичные смыкания соседних элементов, и, судя по изображению, оно в целом приближается к среде с неким усредненным показателем преломления. Изображение образца 8 (здесь не приводится) качественно похоже на изображение образца 7. Однако, как мы увидим далее, разная степень заполнения пустот, не приводящая к существенной разнице в изображениях, может привести к значительному отличию их оптических характеристик.

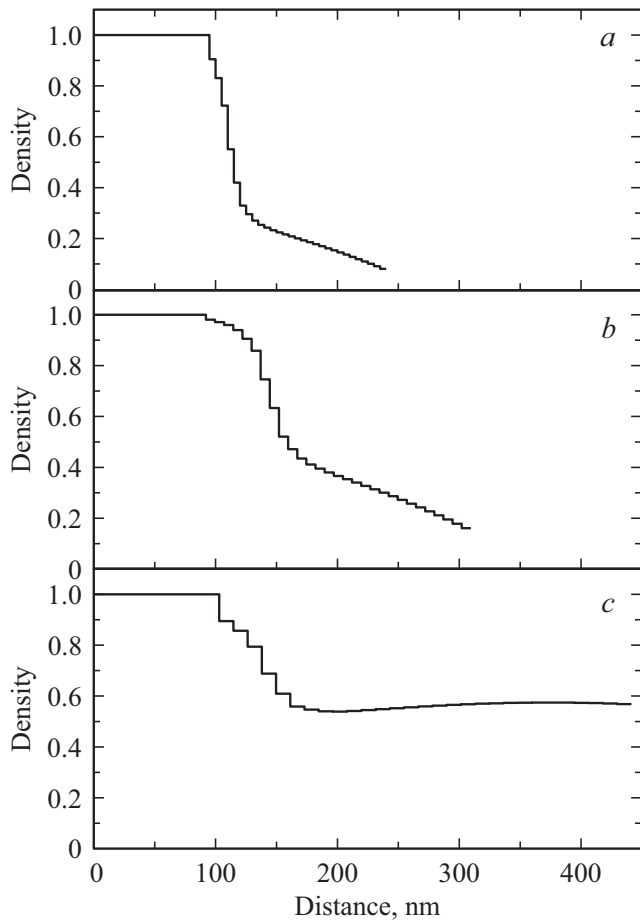
Спектры пропускания и отражения полученных образцов приведены на рис. 4. Для сравнения там же



**Рис. 4.** Спектры пропускания (*a*) и отражения (*b*) образцов ИТО с плотноупакованным слоем толщиной 100 нм (4), а также с нанесенными на него самоорганизующимся покрытием электронно-лучевого испарения толщиной 50 нм в эквиваленте плотной пленки и дополнительными слоями магнетронного распыления толщиной 70 нм (7), 100 нм (8) и 170 нм (9) в эквиваленте плотной пленки.

приведены спектры исходного образца 4, состоящего из плотной пленки ИТО толщиной 100 нм. Согласно рисунку, оптические характеристики образцов существенно зависят от количества осажденного методом магнетронного распыления материала. Несмотря на то что все сформированные дополнительные покрытия оказывали просветляющий эффект в области оптического и ближнего ИК излучения, его характер меняется по мере заравнивания пустот в пленке самоорганизующегося покрытия. Наилучший результат с точки зрения пропускания излучения в области видимого диапазона среди рассмотренных покрытий обеспечивает образец 7. На вставке рис. 4, *a* приведено сравнение спектров пропускания этого образца и образца 6, который обладает покрытием с максимальным просветляющим эффектом, доступным для однослойных самоорганизующихся покрытий, полученных методом электронно-лучевого ис-





**Рис. 5.** Расчетные профили распределения вещества в структуре пленок образцов 5 (*a*), 7 (*b*) и 9 (*c*).

парения на горячую подложку. Заметим также, что образец 6 имеет меньшую массу нанесенного просветляющего покрытия (120 нм в эквиваленте плотной пленки) по сравнению с комбинированным покрытием образца 7 (50 + 100 нм). Следовательно, поглощение света в материале образца 6 можно считать меньшим. По всей видимости, преимущество образца 7 объясняется тем, что, как было показано в работе [32], при заравнивании пустот в самоорганизующихся покрытиях на первой стадии идет также уплотнение зародышевого слоя, приводящее к уменьшению контраста показателей преломления на границе исходной и дополнительной, просветляющей, пленок. В то же время просветляющая пленка образца 7 еще имеет градиентный характер, способствующий более эффективному выводу излучения. Дальнейшее нанесение материала методом магнетронного распыления, приводящее к уплотнению дополнительной пленки, приводит к возникновению сложных интерференционных эффектов, с участием ее внешней границы. По данным рис. 4, образец 9 с наиболее плотной из исследуемых образцов просветляющей пленкой обнаруживает соответственно максимальные амплитуды спектральных зависимостей. В то же время промежуточ-

ное по плотности дополнительное покрытие образца 8 обеспечивает его преимущество в области ближнего ИК диапазона.

Для подтверждения высказанных предположений о характере распределения вещества в структуре исследованных покрытий было проведено моделирование пленок ИТО, в котором пленки представлялись в качестве последовательных слоев, характеризующихся различной плотностью материала. Далее методом последовательных приближений находилось такое распределение вещества в пленке, которое бы обеспечило лучшее соответствие расчетных спектров пропускания и отражения наблюдаемым в эксперименте. Подробно метод нахождения профилей распределения вещества и показателя преломления в структуре пленок рассмотрен в работе [32]. Расчетные профили объемного коэффициента заполнения последовательности слоев ИТО для образцов 7 и 9 приведены на рис. 5. Там же приведен профиль исходного для них образца 5. Как видим, результаты моделирования полностью подтверждают высказанные предположения. Наилучший с точки зрения вывода света образец 7 (рис. 5, *a*), полученный методом комбинированного напыления, характеризуется более плавным изменением плотности материала (и, следовательно, эффективного показателя преломления) в структуре пленки по сравнению с исходным образцом 5, в то время как основная часть дополнительного слоя наиболее плотного образца 9 представляет собой практически однородную среду с выраженной внешней границей. Полученные расчетные профили находятся в хорошем соответствии с изображениями пленок, полученными с помощью растровой электронной микроскопии (рис. 1).

### 3. Заключение

Таким образом, метод комбинированного нанесения пленок, заключающийся в создании самоорганизующихся наноструктурированных покрытий методом электронно-лучевого испарения на горячую подложку с дальнейшим заравниванием пустот методом магнетронного распыления при комнатной температуре, позволяет создавать просветляющие покрытия, которые при нанесении на плотные пленки ИТО обеспечивают наилучший вывод света из них. Как было показано в настоящей работе, оптические свойства получаемых просветляющих покрытий зависят от соотношения масс вещества, наносимого на каждой стадии их осаждения, что позволяет создавать покрытия, направленные на решение разных задач, например, работающие в области видимого или ИК диапазона спектра. Поскольку на каждом этапе может быть нанесено разное количество материала, изменяющееся в некоторых пределах, то задача получения покрытия, оптимального для поставленной задачи, становится двухпараметрической. Учитывая, что самоорганизующееся покрытие на первой стадии комбинированного способа нанесения пленок может

быть нанесено другим способом (например, методом магнетронного распыления) или при других параметрах технологических процессов, задача оптимизации покрытия становится многопараметрической. Несмотря на то что целью данной работы не являлся поиск оптимальной конфигурации просветляющих пленок, нам удалось показать, например, что покрытие, полученное комбинацией пленок электронно-лучевого испарения и магнетронного распыления с толщинами 50 и 70 нм в эквиваленте плотной пленки соответственно, обеспечивает значительный прирост вывода света по сравнению с лучшими образцами самоорганизующихся градиентных покрытий. Компьютерное моделирование характера распределения вещества в структуре исследованных покрытий обнаруживает наиболее плавный характер его изменения в структуре данного образца.

В заключение хочется подчеркнуть, что предлагаемый в работе метод полезен с практической точки зрения, поскольку дает возможность просветлять хорошо проводящие, плотные пленки, создавая покрытия, ориентированные на работу при больших значениях плотностей электрического тока.

## Список литературы

- [1] R.H. Horng, C.C. Yang, J.Y. Wu, S.H. Huang, C.E. Lee, D.S. Wu. *Appl. Phys. Lett.*, **86**, 221101 (2005).
- [2] Y.C. Lee, C.E. Lee, T.C. Lu, H.C. Kuo, S.C. Wang. *Semicond. Sci. Technol.*, **23**, 045013 (2008).
- [3] Paul G.O'Brien, Yang Yang, Alongkarn Chutinan, Pratih Mahtani, Keith Leong, Daniel P. Puzzo, Leonardo D. Bonifacio, Chen-Wei Lin, Geoffrey A.Ozin, Nazir P. Kherani. *Solar Energy Mater. & Solar Cells*, **102**, 173 (2012).
- [4] Joong-Yeon Cho, Kyeong-Jae Byeon, Heon Lee. *Optics Lett.*, **36**, 3203 (2011).
- [5] Paul G. O'Brien, Daniel P. Puzzo, Alongkarn Chutinan, Leonardo D. Bonifacio, Geoffrey A. Ozin, Nazir P. Kherani. *Adv. Mater.*, **22**, 611 (2010).
- [6] J.T. Leonard, D.A. Cohen, B.P. Yonkee, R.M. Farrell, S.P. DenBaars, J.S. Speck, S. Nakamura. *J. Appl. Phys.*, **118**, 145304 (2015).
- [7] Jong Kyu Kim, Thomas Gessmann, E. Fred Schubert, J.-Q. Xi, Hong Luo Jaehee Cho, Cheolsoo Sone, Yongjo Park. *Appl. Phys. Lett.*, **88**, 013501 (2006).
- [8] Martin F. Schubert, J.-Q. Xi, Jong Kyu Kim, E. Fred Schubert. *Appl. Phys. Lett.*, **90**, 141115 (2007).
- [9] Jong Kyu Kim, Sameer Chhajed, Martin F. Schubert, E. Fred Schubert, Arthur J. Fischer, Mary H. Crawford, Jaehee Cho, Hyunsoo Kim, Cheolsoo Sone. *Adv. Mater.*, **20**, 801 (2008).
- [10] K. Robbie, L.J. Friedrich, S.K. Dew, T. Smy, M.J. Brett. *J. Vac. Sci. Technol. A*, **13**, 1032 (1995).
- [11] X.Y. Xue, Y.J. Chen, Y.G. Liu, S.L. Shi, Y.G. Wang, T.H. Wanga. *Appl. Phys. Lett.*, **88**, 201907 (2006).
- [12] A.J. Chiquito, A.J.C. Lanfredi, E.R. Leite. *J. Phys. D: Appl. Phys.*, **41**, 045106 (2008).
- [13] Hak Ki Yu, Wan Jae Dong, Gwan Ho Jung, Jong-Lam Lee. *ACS Nano*, **5**, 8026 (2011).
- [14] R. Rakesh Kumar, Venkateswarlu Gaddam, K. Narasimha Rao, K. Rajanna. *Mater. Res. Express*, **1**, 035008 (2014).
- [15] Grazielle O. Setti, Dosil P. de Jesus, Ednan Joanni. *Mater. Res. Express*, **3**, 105021 (2016).
- [16] A.L. Beaudry, R.T. Tucker, J.M. La Forge, M.T. Taschuk, M.J. Brett. *Nanotechnology*, **23**, 105608 (2012).
- [17] Hak Ki Yu, Jong-Lam Lee. *Scientific Rep.*, **4**, Article number: 6589 (2014).
- [18] Gang Meng, Takeshi Yanagida, Kazuki Nagashima, Hideto Yoshida, Masaki Kanai, Annap Klamchuen, Fuwei Zhuge, Yong He, Sakon Rahong, Xiaodong Fang, Seiji Takeda, Tomoji Kawai. *J. Am. Chem. Soc.*, **135**, 7033 (2013).
- [19] Zhina Gong, Qiang Li, Yufeng Li, Han Xiong, Hao Liu, Shuai Wang, Ye Zhang, Maofeng Guo, Feng Yun. *Appl. Phys. Express*, **9**, 082102 (2016).
- [20] Min Joo Park, Chan Ul Kim, Sung Bum Kang, Sang Hyuk Won, Joon Seop Kwak, Chil-Min Kim, Kyoung Jin Choi. *Adv. Optical Mater.*, **5**, 1600684 (2017).
- [21] J.W.S. Rayleigh. *Proc. London Math. Soc.*, **11**, 51 (1880).
- [22] P.H. Berning. *J. Opt. Soc. Am.*, **52** (4), 431 (1962).
- [23] Sameer Chhajed, Martin F. Schubert, Jong Kyu Kim, E. Fred Schubert. *Appl. Phys. Lett.*, **93**, 251108 (2008).
- [24] A. Mahdjoub, L. Zighed. *Thin Sol. Films*, **478**, 299 (2005).
- [25] Tolga Aytug, Andrew R. Lupini, Gerald E. Jellison, Pooran C. Joshi, Ilia H. Ivanov, Tao Liu, Peng Wang, Rajesh Menon, Rosa M. Trejo, Edgar Lara-Curzio, Scott R. Hunter, John T. Simpson, M. Parans Paranthaman, David K. Christen. *J. Mater. Chem. C*, **3**, 5440 (2015).
- [26] J.-Q. Xi, Martin F. Schubert, Jong Kyu Kim, E. Fred Schubert, Minfeng Chen, Shawn-Yu Lin, W. Liu, J.A. Smart. *Nature Photonics*, **1**, 176 (2007).
- [27] И.П. Смирнова, Л.К. Марков, А.С. Павлюченко, М.В. Кукушкин, С.И. Павлов. *ФТП*, **48**, 61 (2014).
- [28] Naoki Yamamoto, Kirihiko Morisawa, Junnosuke Murakami, Yasuhiro Nakatan. *ECS Solid State Lett.*, **3**, 84 (2014).
- [29] Л.К. Марков, И.П. Смирнова, А.С. Павлюченко, М.В. Кукушкин, Д.А. Закгейм, С.И. Павлов. *ФТП*, **50**, 1001 (2016).
- [30] W. Cai, V. Shalae. *Optical Metamaterials: Fundamentals and Applications* (Springer Science & Business Media, Dec. 1, 2009 — Technology & Engineering).
- [31] В.И. Оделевский. *ЖТФ*, **21Б** (6), 678 (1951).
- [32] Л.К. Марков, А.С. Павлюченко, И.П. Смирнова, С.И. Павлов. *ФТП*, **10**, 1228 (2018).
- [33] Shi Qiang Li, Peijun Guo, Lingxiao Zhang, Wei Zhou, Teri W. Odom, Tamar Seideman, John B. Ketterson, Robert P.H. Chang. *ACS Nano*, **5**, 9161 (2011).
- [34] Peijun Guo, Richard D. Schaller, Leonidas E. Ocola, Benjamin T. Diroll, John B. Ketterson & Robert P.H. Chang. *Nature Commun.*, **7**, Article number: 12892 (2016).

Редактор Г.А. Оганесян



## Technique of formation of the antireflection coatings based on ITO films

*L.K. Markov, A.S. Pavluchenko, I.P. Smirnova*

Ioffe Institute,  
194021 St. Petersburg, Russia

**Abstract** In this work, the technique of formation of transparent conducting indium tin oxide films for applications with high current densities has been considered. These films have to combine good sheet conductivity with increased transmittance over a wide wavelength range. A two-stage process has been suggested to obtain such coatings. At the first stage, a dense indium tin oxide films with good electric conductivity is formed; then an additional antireflection layer of the same material is deposited. Possible methods of optimization of these additional indium tin oxide films obtained by means of the formation of nanostructured self-assembled coatings on surface of the dense films have been studied. It has been shown that the best light extraction over a wide wavelength range is provided by the composite film deposition technique that consists in the fabrication of self-assembled nanostructured coatings by electron-beam evaporation on a heated substrate and further refilling of the voids by magnetron sputtering at room temperature. Since the optical properties of obtained antireflection coatings are affected by the ratio of mass of materials deposited at each stage, the technique makes it possible to optimize the film properties depending on their applications. The computer simulation of a behavior of the material distribution over structure of the studied coatings has corroborated that the composite film deposition technique can produce smooth changing of the effective refractive index in the coating structure, which leads to the maximum light extraction in the optical range.