文章编号: 0258-7025(2008)06-0916-05

光学薄膜界面粗糙度互相关特性与光散射

潘永强1,2 吴振森2 杭凌侠1

(1西安工业大学光电工程学院,陕西西安 710032;2西安电子科技大学理学院,陕西西安 710071)

摘要为了研究光学薄膜界面的互相关特性及光散射特性,介绍了光学薄膜的散射理论和模型。依据光学薄膜矢量散射的表达式,借助于总背向散射理论分析了光学薄膜界面互相关特性对光散射的影响,并用实验验证和分析 了 TiO2 单层薄膜膜层厚度,K9 玻璃基底粗糙度以及离子束辅助沉积(IBAD)工艺等因素对光学薄膜界面互相关 特性的影响。结果表明,根据矢量光散射理论计算的光学薄膜界面互相关特性和光散射的关系与实验测量结果一 致。随着基底粗糙度、薄膜光学厚度的增加,薄膜界面的互相关特性会变差,采用离子束辅助沉积的 TiO2 单层薄 膜的膜层界面互相关性明显好于不用离子束辅助沉积的薄膜。

关键词 薄膜;互相关特性;光散射;表面粗糙度

中图分类号 O 484 文献标识码 A

Optical Thin Films Interfaces Roughness Cross-Correlated Properties and Light Scattering

Pan Yongqiang^{1,2} Wu Zhensen² Hang Lingxia¹

¹School of Photoelectric Engineering, Xi'an Technological University, Xi'an, Shaanxi 710032, China ²School of Science, Xidian University, Xi'an, Shaanxi 710071, China)

Abstract In order to study cross correlated properties and light scattering of optical thin films interfaces roughness, the theoretical models of optical thin films interfaces roughness light scattering were concisely presented. Furthermore, based on the expression of vectorial scattering of optical films, influence of interfaces roughness cross-correlated properties on light scattering was analyzed by total backscattering theory. Moreover, effects of TiO_2 single optical films thickness, substrate roughness of K9 glass and ion beam assisted deposition (IBAD) technique on interface roughness cross correlated properties were studied by experiments, respectively. The results show that theoretical results obtained by integrating vector light scattering are agreement well with experimental results. With the increase of films thickness and substrates roughness, the interfaces roughness cross-correlated properties decrease. When ion beam assisted deposition is used, a high degree of cross-correlated properties can be observed. **Key words** thin films; cross-correlated properties; light scattering; surface roughness

1 引 言

光学薄膜中的散射损耗是影响薄膜性能的重要因素之一,在短波光学特别是软 X 射线光学领域, 多层膜反射镜的反射率与镜面的均方根(RMS)粗 糙度有着密切的关系,随着表面均方根粗糙度的增 大,镜面反射率将急剧下降^[1,2];在高能激光器装置 中,由于极小的光散射引起的光损耗使光学薄膜的 抗激光损伤阈值大大降低^[3];在高精度激光陀螺系 统中,激光的背向散射会使散射光在激光陀螺谐振 腔内产生背向散射谐振从而影响激光陀螺的正常工 作。而表面粗糙度是引起散射的主要原因^[4~6]。在 密集波分复用系统中,平面反射镜的粗糙度决定了

收稿日期:2007-09-24; 收到修改稿日期:2007-11-30

基金项目:国家自然科学基金(60371020)资助项目。

作者简介:潘永强(1974—),男,陕西人,副教授,硕士生导师,西安电子科技大学博士研究生,主要从事光学薄膜工艺和光 学薄膜散射特性的研究。E-mail:pyq_867@163.com

导师简介:吴振森(1946—),男,湖北人,教授,博士生导师,主要从事随机介质、非均匀介质以及光学薄膜中电磁(光)波的传播与散射、目标激光散射特性和电磁散射特性等方面的研究。E-mail:wuzhs@mail.xidian.edu.cn

917

其反射率,从而决定了单根光纤所能达到的最大容量。因此测量光学零件和光学薄膜的表面散射对获取表面微观几何形状的信息,评价光学表面的微观质量以及提高光学薄膜的质量,改进薄膜沉积工艺等方面具有重要的现实意义。总体上说,光学薄膜的散射可分为表面散射和体散射两种^[7]。大量的研究发现,在大多数光学系统中表面散射的影响是主要的^[8]。特别是在可见和紫外光区,高质量光学薄膜的散射主要是由于膜层界面的粗糙度引起的,而光学薄膜的界面粗糙度主要有基底或下层膜的影响而产生的非固有粗糙度,以及膜层生长过程中产生的固有粗糙度两种。

在光学薄膜的制备过程中,由于基底表面会有 不规则的缺陷,膜层厚度的随机起伏随工艺条件的 不同而变化,因此膜层界面的互相关特性也就有各 种不同的形式。Roche等^[9]用积分球测量了玻璃基 底上的单层 ZnS 薄膜的积分散射损耗,在与标量理 论的计算结果比较后,认为 ZnS 薄膜的上下界面是 完全相关的。战元龄等^[10]通过光学薄膜的矢量散 射模型研究了单层薄膜界面粗糙度的互相关特性, 及不规则缺陷的空间频率对互相关特性的影响。本 文通过对矢量散射模型的积分,利用光学薄膜的总 背向散射研究了单层 TiO₂ 薄膜界面粗糙度的相关 特性对光学薄膜散射的影响,并具体研究了单层 TiO₂ 薄膜厚度、基底表面粗糙度以及离子束辅助沉 积(IBAD)工艺等因素对薄膜界面粗糙度互相关特 性的影响。

2 矢量散射理论

基于一阶微扰理论的矢量光散射,在表面均方 根粗糙度远小于入射波长时,即σ≪λ时,根据有关 微粗糙面的角分布散射可定义^[11]

$$\frac{\mathrm{d}P}{P_{0}\mathrm{d}\Omega} = Fg\left(k - k_{0}\right),\tag{1}$$

式中 dP/dΩ 表示散射方向(θ , Φ) 上单位立体角 dΩ = sin θ d θ d Φ 内的微分散射功率,其中 θ 和 Φ 分别为 散射光的极化角和方位角;F 是与理想光学光滑表 面的折射率及入射和探测有关的光学因子;g($k - k_0$)为粗糙表面的功率谱密度函数,k和 k_0 分别为入 射光和散射光的波矢量,其中 $k = (2\pi/\lambda)$ sin θ , θ_0 为入射角。功率谱密度函数是自协 方差函数 $G(\tau) = \langle h(\mathbf{r})h(\mathbf{r} + \tau) \rangle$ 的傅里叶变换, $h(\mathbf{r})$ 为表面粗糙度轮廓的高度函数, τ 为滞后长度, \mathbf{r} 为x-y 平面内的位置矢量。如果表面为各向同性表 面,且入射光垂直入射,则有 $g(k-k_0) = g(k)$ 。

N 层光学薄膜矢量散射理论的表达式可写成^[12]

$$\frac{\mathrm{d}P}{P_{0}\mathrm{d}\Omega} = \sum_{i=0}^{N} \sum_{j=0}^{N} F_{i}F_{j}^{*}g_{ij}(k), \qquad (2)$$

式中 F_i 表示多层膜中第i个界面的光学因子, F_j^* 表示第j个界面光学因子 F_j 的共轭复数。光学因子是与入射光、散射光以及多层膜的折射率和厚度有关的因子。g为功率谱密度函数,它是函数 $G_{ij}(\tau) = \langle h_i(\mathbf{r})h_j(\mathbf{r}+\tau) \rangle$ 的汉克尔变换,其中, h_i 表示第i个界面的粗糙度高度。如果i = j,则 G_{ij} 表示为自协方差函数,否则为互相关函数,它表示两个界面粗糙度之间的相互关系。为了区分不同界面粗糙度互相关特性对散射的影响,Amra^[13]将(2)式改写为

$$\frac{\mathrm{d}P}{P_0 \mathrm{d}\Omega} = \sum_{i=0}^{N} |F_i|^2 g_{ii}(k) + \sum_{i=0}^{N} \sum_{j=0, j\neq i}^{N} F_i F_j^* g_{ij}(k),$$
(3)

式中第一项代表几个散射强度的简单叠加,第二项 表示散射波场的相干叠加。如果令 $G_{ij} = 0$,即有 g_{ij} = 0,则(2)式可简化为完全非相关模型。如果多层 膜中各个界面的粗糙度完全相同,即 $G_{ii} = G_{ij} = G$, 从而有 $g_{ii} = g_{ij} = g$,则多层膜界面完全相关模型的 散射表达式可写为

$$\frac{\mathrm{d}P}{P_{0}\mathrm{d}\Omega} = \Big|\sum_{i=0}^{N} F_{i}\Big|^{2} g(k), \qquad (4)$$

为了直接引入散射损耗,并便于和角分布散射联系 起来,引入总背向散射 S,其定义为总的背向散射功 率除以入射功率,即

$$S = \frac{P}{P_0} = R \left(\frac{4\pi\sigma}{\lambda}\right)^2,\tag{5}$$

R为表面总反射率。对于各向同性表面,可以得到

$$S = 2\pi \int_{0}^{\pi/2} \left(\frac{\mathrm{d}P}{P_0 \,\mathrm{d}\Omega} \right) \sin \theta \cdot \mathrm{d}\theta_{\circ} \tag{6}$$

3 实 验

基底为 K9 玻璃, 折射率 n_s =1.52, 使用配备了 西安工业大学自行研制的宽束冷阴极离子源的国营 南光机械厂生产的 ZZS-7001/G 箱式光学镀膜机, TiO₂ 薄膜的制备采用电子枪热蒸发的方式沉积。 TiO₂ 薄膜表面粗糙和基底表面粗糙度的测量用的 是英国泰勒-霍普森有限公司生产的 Talysurf CCI 白光干涉表面轮廓仪, 散射的测量用的是日本产的 带有积分球的 u-3501 分光光度计, 总背向散射值均 为波长为633 nm处的散射值。

4 实验结果及分析

为了研究光学薄膜粗糙面的散射,不仅要考虑 每个界面的粗糙度还要考虑这些界面粗糙度之间的 互相关特性。因为互相关特性对于光学薄膜的散射 有着非常重要的影响,通过互相关特性的研究可以 进一步降低光学薄膜的散射损耗并能有效地分析光 学薄膜的表面形貌。

只考虑完全相关界面和完全非相关界面两种情 况。这两种情况下光学薄膜总的背向散射可分别通 讨对(4)式的完全相关模型和(3)式的第一项的完全 非相关模型积分得到。图1所示为理论计算的 K9 玻璃基底上单层 TiO₂ 薄膜在完全相关模型和完全 非相关模型下的总背向散射S与基底的总背向散射 S₀ 的比率和薄膜厚度之间的关系。其中 K9 玻璃的 折射率 $n_s = 1.52$, TiO₂ 薄膜的折射率 $n_f = 2.15$, 计 算用的波长为633 nm并假定界面为高斯互相关函 数,其相关长度为500 nm。从图中可以看出,无论是 在完全相关模型还是在完全非相关模型下,总的背 向散射都随着薄膜的厚度呈现出周期性的变化,并 且极值出现在整数 $m = 4nd/\lambda$ 处。不同的是,在完全 相关模型下总背向散射的极大值出现在 m 为奇数 时,极小值出现在 m 为偶数时。因此对于高折射率 薄膜而言,散射的变化与反射率的变化是完全同步 的;非相关模型则恰好相反。这种高折射率单层膜 界面互相关特性对散射的影响是非常具有代表性 的,而且不同的表面粗糙度参数模拟和分析结果表 明,单层膜的总背向散射随膜层厚度的这种周期性 变化趋势是不受表面粗糙度具体参数的影响。此 外,理论研究还发现,当薄膜厚度一定时单层膜总的 背向散射随波长的变化也呈现出相同的变化趋势。

图 2 为在基底表面均方根粗糙度约为2.82的一 组基底上沉积的中心波长为633 nm,光学厚度分别





Fig. 1 Ratio of total backscattering S of TiO₂ films to the total scattering S_0 of the substrate versus films thickness

为 $nd = m\lambda/4(m = 1,2,3,4,5,6)$ 的 TiO₂ 薄膜,用 带有积分球的分光光度计测量的波长在633 nm处 的总背向散射。从测量的结果可以看出,TiO₂ 薄膜 的总背向散射随着膜层厚度的增加在 $\lambda/4$ 的偶数倍 点增加,在 $\lambda/4$ 的奇数倍点减小。这说明随着膜层 厚度的增加薄膜表面的粗糙度除了基底本身的粗糙 度在薄膜表面复现外,薄膜生长过程中的固有粗糙 度也逐渐显现出来。因此,从总体上看,随着膜层厚 度的增加薄膜界面粗糙度的互相关性会逐渐减弱。



图 2 测量的 K9 玻璃基底上不同厚度的 TiO₂ 薄膜的 总背向散射





图 3 测量的不同粗糙度的 K9 玻璃基底上 TiO₂ 薄膜的 总背向散射

Fig. 3 Measured total backscattering S of TiO_2 thin films on K9 glass substrate with different RMS

为了进一步研究基底粗糙度对光学薄膜表面粗 糙度以及界面互相关特性的影响,图 3 给出了三种 表面均方根粗糙度分别为1.22 nm,2.84 nm, 5.13 nm的基底上沉积的中心波长为633 nm,光学 厚度分别为 $nd = m\lambda/4(m = 1,2,3,4,5)$ 的15个样 片上测量的 TiO₂ 薄膜的总背向散射。从图中可以 看出,随着薄膜厚度的增加,其互相关特性减弱,基 底的表面粗糙度愈小,其互相关特性的变化越剧烈。 特别是对于表面粗糙度最小的一组样片,当薄膜厚 度逐渐增加时,其互相关特性的变化最为明显。这 说明,在基底粗糙度较小的情况下,随着薄膜厚度的 增加,薄膜生长过程中产生的固有粗糙度越容易体 现出来。但是其总的背向散射仍然远低于粗糙度较 高的基底上沉积的薄膜。即可以通过降低基底表面 粗糙度的方法来降低薄膜的散射损耗,但是,其薄膜 界面的互相关性会减弱。

图 4 所示为图 3 中基底粗糙度为2.84 nm的一 组数据,另外一组是在表面均方根粗糙度为 2.82 nm的基底上采用离子束辅助沉积技术沉积的 不同厚度的 TiO₂ 薄膜的总背向散射测量值。从图 中不仅可以得出与图 3 基本相同的结论外,还可以 看出采用离子束辅助沉积的薄膜的互相关性随着膜 层厚度的增加,其相关性的变化趋势明显弱于不用 离子束辅助技术沉积的薄膜,即采用离子束辅助沉 积技术的薄膜界面的相关性好于不用离子束辅助沉 积的薄膜。这说明,采用离子束辅助沉积技术,可以 有效地降低膜层生长过程中产生的固有粗糙度,使 沉积的膜层更加致密,从而使薄膜的界面粗糙度较 好地复现出基底的粗糙度轮廓。





Fig. 4 Measured total backscattering S of TiO₂ thin films deposited with IBAD and without IBAD on K9 glass substrate

结 论 5

以矢量散射理论为基础,以总背向散射为评价 指标,从理论和实验的角度分析和验证了光学薄膜 界面互相关特性对薄膜光散射的影响,并用不同厚 度的 TiO₂ 薄膜分别研究了薄膜的光学厚度、基底 的表面粗糙度以及离子束辅助沉积技术等因素对光 学薄膜界面互相关性的影响。

沉积在 K9 玻璃基底上的 TiO₂ 薄膜的总背向 散射随着膜层厚度的变化呈现出周期性变化的趋 势,在完全相关模型下,这种周期性的变化与其反射 率的变化一致,完全非相关模型则恰好相反;并且,

总背向散射膜层随厚度的这种周期性变化从理论上 来说不受膜层表面粗糙度参数的变化。沉积在粗糙 度较大基底上的 TiO₂ 薄膜的界面粗糙度互相关性 随着薄膜厚度的增加逐渐减弱;随着基底粗糙度的 降低,TiO2薄膜的界面相关性从强相关逐渐向弱相 关变化,即基底表面越光滑其沉积的薄膜的界面互 相关性越弱。在其他条件相同的情况下,采用离子 束辅助沉积技术可以降低薄膜的表面粗糙度,增加 薄膜的致密度,增强薄膜界面粗糙度的相关性。实 验研究结果可为设计和制备高质量低散射损耗的薄 膜元件提供有效的理论依据和实验数据。

老 文 献

- 1 R. Haelbich, A. Segmiiller. Smooth multilayer films suitable for X-ray mirrors [J]. Appl. Phys. Lett., 1979, 34(3):184~ 186
- 2 Xu Changshan, Gong Yan, Xiang Yang et al.. Effects of transfer function of profilometer on roughness measurement of ultra-smooth surface [J]. Optics and Precision Engineering, 2002, **10**(1):45~49 徐长山,巩 岩,向 阳等. 表面轮廓仪传递函数对超光滑表

面粗糙度测量的影响[J]. 光学精密工程, 2002, 10(1):45~49

Hou Haihong, Hong Ruijin, Zhang Dongping et al.. Total integrated scatterometer for measuring the microroughness of optical thin films [J]. Chinese J. Lasers, 2005, 32(9):1258~ 1261

侯海虹,洪瑞金,张东平等.测量薄膜微粗糙度的总积分散射 仪[J]. 中国激光, 2005, 32(9):1258~1261

- Claude Amra, C. Grèzes-Besset, L. Bruel. Comparison of surface and bulk scattering in optical multilayers [J]. Appl. Opt., 1993, 32(28):5492~5503
- Wang Yinglong, Zhang Rongmei, Fu Guangsheng et al.. Influence of inert gas pressure on the surface roughness of silicon film prepared by pulsed laser deposition [I]. Chinese J. Lasers, 2004, 31(6):698~700

王英龙,张荣梅,傅广生等.环境气压对脉冲激光烧蚀沉积纳 米 Si 薄膜表面粗糙度的影响[J]. 中国激光, 2004, 31(6):698 ~ 700

- 6 Hou Haihong, Fan Zhengxiu, Shao Jianda et al.. Scalar scattering theory of optical surfaces [J]. Laser - 8. Optoelectronics Progress, 2005, 42(11):35~38 侯海虹,范正修,邵建达等.光学表面的标量散射理论[J].激 光与光电子学进展,2005,42(11):35~38
- 7 Hou Haihong, Shen Jian, Shen Zicai et al.. Stratified-interface scattering model for multilayer optical coatings [J]. Acta Optica Sinica, 2006, 26(7):1102~1106 侯海虹,沈 健,沈自才等.光学薄膜的分层界面散射模型[J]. 光学学报,2006,26(7):1102~1106
- 8 C. Amra, G. Albrand, P. Roche. Theory and application of antiscattering single layers; antiscattering antireflection coatings [J]. Appl. Opt., 1986, 25(16):2695~2702
- 9 P. Roche, P. Bousquet, F. Flory et al.. Determination of interface roughness cross-correlated properties of an optical coating from measurements of the angular scattering [J]. J. Opt. Soc. Am. A, 1984, 1(10):1208~1230
- 10 Zhan Yuanling, Wang Li. Determination of interface crosscorrelation properties of optical coatings [J]. Acta Optica Sinica, 1989, 9(7):635~639 战元龄,王 立.光学薄膜界面互相关特性的确定[J].光学学

中

报,1989,9(7):635~639

- J. M. Elson. Theory of light scattering from a rough surfaces with an inhomogeneous dielectric permittivity [J]. *Phys. Rev.* B, 1984, 30(10):5460~5480
- 12 P. Bousquet, F. Flory, P. Roche. Scattering from multilayer

thin films: theory and experiment [J]. J. Opt. Soc. Am., 1981, **71**(9):1115~1123

C. Amra. Light scattering from multilayer optics. [. Tools of investigation [J]. J. Opt. Soc. Am. A, 1994, 11(1):197~210

征稿简则

《中国激光》是由中国光学学会和中国科学院上海光学 精密机械研究所共同主办,科学出版社出版的学术期刊,国 内外公开发行。

1. 刊登内容

主要发表我国科技人员在激光理论与技术领域的最新 进展,栏目包括:综述、实验技术与元件、激光物理与化学、全 息技术、光束传输、光通信及其元器件、光纤元件、测量技术、 材料、薄膜、激光应用、激光生物学与医学,等等。请作者在 来稿中注明所投栏目,并注明所属中图分类号。

2. 投稿与查询

本刊接受 Email 投稿或网络投稿,投稿信箱:submit@ siom. ac. cn,网络投稿与查询:登录中国光学期刊网 www. opticsjournal. net。来稿请注明作者真实姓名、服务单位、详 细通信地址、联系电话、邮政编码及电子信箱。本刊收到稿 件后在 2~3 个工作日内 Email 发出收稿通知。作者投稿 2 个月内未收到本刊处理意见,可另投他刊。但需事先告知本 刊编辑部。编辑部有权对来稿删改。来稿请勿涉及保密内 容,并请提供相关单位证明。来稿请附所有作者签名,作者 顺序一经确定,请勿任意删改。可同时提供 6~8 位国内外 同行专家的详细通讯方式和研究领域,供送审时参考。

3.来稿要求

3.1 文字要求

来稿应含中英文题目、摘要、关键词和第一作者简介,全 文要求在 5000 字以内。来稿请用小 4 号,1.5倍或 2 倍行 距,另用不同颜色标明文内尤其公式内易混淆的大小写、上 下角码、文种、算符等。计量单位一律采用国家标准 GB3100-3102-93 规定,摘要和正文中的缩略词在第一次出 现时都必须写出全称,后附缩略词。

3.2 标题与摘要

标题应言简意赅,字数控制在 20 字以内,不使用不公知 的外文缩写词(化学符号除外)。中英文摘要请用第三人称 叙述,不使用"本文"或"作者"等主语,不引用参考文献、数学 公式和化学式。内容应包括四个要素:即研究目的、方法、结 果、结论。中英文摘要内容应基本对应,中文摘要 300 字左 右,英文摘要 150~180 个单词。

3.3 关键词

每篇论文应给出 4~8个关键词,第一个列出该文主要 工作或内容所属的二级学科名称,第二个列出该文研究得到 的成果名称或文内若干个成果的总类别名称,第三个列出该 文在得到上述成果或结论时采用的科学研究方法的具体名称,第四个列出在前三个关键词中没有出现的,但作为主要 研究对象的事或物质的名称,如有需要,还可以列出作者认 为有利于检索和文献利用的第五,第六个等关键词。 3.4 图表

光

要求设计美观,大小适中,尺寸一般不小于5 cm×7 cm, 线条均匀,主辅线分明,粗线一般为0.25~0.5 mm,细线一 般为粗线的 1/2,图中主线用粗线,如函数曲线等,辅线用细 线,如坐标轴线、指示线等;照片要求对比度高,层次清晰。 推荐使用三线表。图题、表题须中英文对照,图面、表面一律 采用英文。

3.5 参考文献

应引用公开出版物,并仔细核对;欢迎作者充分引用本 刊上同行的文献。每条文献应作相应的文献类型标识(见方 括号内)。参考文献的原文献为英文,请用英文表示,如原文 献为其他文种,请译成英文,在该文献最后用括号注明,如原 为日文,则用(in Japanese),如原文献为中文,则给出中文和 相应的英文译文。每条文献的顺序和标点如下:专著[M]、 学位论文[D]、报告[R]——著者(三名).文献题名.版本(专 著用),出版地:出版者,出版年.起止页码;期刊[J]——作者 (三名).论文题目[J].刊名,出版年,卷(期):起止页码;专利 [P]——专利申请者.专利题目[P].专利国别,专利文献种 类,专利号,出版日期;文集[C]——作者(三名).论文题目 [C].编者,论文集名,出版地:出版者,年.起止页码。

3.6 基金资助、作者简介

论文如获省、部级以上的基金资助,须在首页的脚注位 置注明基金资助单位全称及批准号。作者简介(含导师简 介)应给出姓名(出生年一),性别,籍贯,民族(汉族可省略), 职称,学历,研究方向,Email。

4. 收费

本刊遵照中国科协和中国科学院有关文件精神,向录用 稿件作者收取适量版面费以聊补本刊的高额亏损。

5.版权

录用稿件一经刊出,论文版权(含各种介质)均归编辑部 所有。本刊向作者酌付稿酬及赠送该期期刊1册,抽印本 10份。

本刊已入编《中国学术期刊(光盘版)》和中国光学期刊 网,著作权使用费在奉寄作者稿酬中一次性支付。如有不同 意将文章编入上述数据库者,请事先声明,本刊将作适当处 理。

特别声明:凡已在国内外正式出版物上登载过的稿件, 本刊一律不予刊登。若发现一稿多投者,本刊三年内不接受 其稿件,并追补对本刊造成的损失。

凡本刊投稿者,均视作接受上述各项规定,本刊不再另 行声明。

本刊在办刊过程中,得到了社会各界的大力协助,谨致 谢忱。