

# TiO<sub>2</sub> 薄膜表面粗糙度与散射特性研究

刘金泽, 潘永强\*, 张达, 樊彦峥

西安工业大学光电工程学院, 陕西 西安 710021

**摘要** 通过电子束热蒸发技术在 K9 玻璃上镀制光学厚度为  $\lambda/4$  的 TiO<sub>2</sub> 薄膜, 研究不同沉积速率和沉积角度对 TiO<sub>2</sub> 薄膜散射损耗的影响规律和机理, 并利用 TalysurfCCI 白光干涉表面轮廓仪和 Horos 散射仪分别测量镀制前后薄膜表面粗糙度和双向反射分布函数。实验结果表明: TiO<sub>2</sub> 薄膜表面粗糙度随着沉积速率的增大而减小, 最终趋于 0.88 nm, 且实验值都小于基底表面粗糙度 1.5 nm, 说明 TiO<sub>2</sub> 薄膜可以降低基底表面粗糙度, 具有平滑基底的作用。随着入射沉积角的增大, 薄膜的表面粗糙度逐渐增大, 当沉积角为 0° 和 20° 时, 薄膜表面粗糙度小于基底表面粗糙度; 当沉积角为 40° 和 60° 时, 薄膜表面粗糙度大于基底表面粗糙度。薄膜表面散射量随表面粗糙度的减小而降低, 两者具有正相关关系, 实验数据与理论计算结果相吻合; 当薄膜表面粗糙度小于基底粗糙度时, 薄膜表面散射将低于裸基底的表面散射, 可实现减散射的效果。

**关键词** 薄膜; 表面粗糙度; 双向反射分布函数; 光学厚度

中图分类号 O484

文献标志码 A

doi: 10.3788/LOP57.033101

## Surface Roughness and Scattering Characteristics of TiO<sub>2</sub> Thin Film

Liu Jinze, Pan Yongqiang\*, Zhang Da, Fan Yanzheng

School of Photoelectric Engineering, Xi'an Technological University, Xi'an, Shaanxi 710021, China

**Abstract** A TiO<sub>2</sub> thin film with an optical thickness of  $\lambda/4$  is plated on K9 glass using the electron beam thermal evaporation technique. The effect and mechanism of different deposition rates and deposition angles on the scattering loss of TiO<sub>2</sub> thin films are investigated. The surface roughness and bidirectional reflection distribution function of the TiO<sub>2</sub> thin film before and after plating are measured using TalysurfCCI white light interference surface profiler and Horos scattering instrument. The results show that the surface roughness of the TiO<sub>2</sub> thin film decreases as the deposition rate increases and eventually reaches 0.88 nm, which is less than the bare substrate surface roughness of 1.5 nm. This indicates that the TiO<sub>2</sub> thin film can reduce the surface roughness of the substrate, and it is capable of smoothing the substrate. As the incident deposition angle increases, the surface roughness of the film gradually increases. When the deposition angles are 0° and 20°, the surface roughness of the film is less than that of the substrate; when the deposition angles are 40° and 60°, the surface roughness of the film is greater than that of the substrate. A positive correlation exists between the amount of surface scattering of the film and the surface roughness. Experimental data agree with theoretical calculations. When the surface roughness of the film is less than that of the substrate, the surface scattering of the film is lower than that of the bare substrate. Thus, TiO<sub>2</sub> thin films can reduce surface scattering from the substrate.

**Key words** thin films; surface roughness; bidirectional reflection distribution function; optical thickness

**OCIS codes** 240.0310; 240.3695; 290.5820

## 1 引言

光学薄膜的散射损耗在先进光学应用领域中越来越受关注, 在高精密光学系统的应用中, 具有低散

射损耗的光学薄膜发挥了重要作用。例如, 在高精密的激光陀螺和引力波探测系统中, 极小的光散射都会严重影响光学系统的成像质量, 对实验结果产生较大的误差<sup>[1-2]</sup>。对光学薄膜散射进行研究, 不仅

收稿日期: 2019-06-19; 修回日期: 2019-07-04; 录用日期: 2019-07-31

基金项目: 陕西省自然科学基金基础研究计划项目(2018JM6031)、陕西省教育厅重点实验室科研计划项目(18JS054)

\* E-mail: pyq\_867@163.com

有利于制备出低散射损耗的高性能薄膜,还可以基于光学薄膜的表面散射特性进行表面形貌检测<sup>[3]</sup>。光学薄膜的散射损耗大体上可分为由薄膜表面粗糙度引起的表面散射和由薄膜内部结构等因素引起的体散射,而且薄膜的表面散射量远大于体散射量<sup>[4]</sup>,因此,若要研究单层光学薄膜的散射特性,就应该从薄膜的表面粗糙度入手。国外学者已对光学薄膜的散射特性进行了深入研究,例如:Harada 等<sup>[5]</sup>分别在不同粗糙度的基底上镀制单层二氧化钛(TiO<sub>2</sub>)薄膜,以研究基底粗糙度对光散射的影响,实验结果表明,随着基底表面粗糙度增加,薄膜的散射强度增大;Schröder 等<sup>[6-7]</sup>基于矢量散射,将不同波长的角分辨光散射值、粗糙度测量值和简化的理论模型相结合来研究不同粗糙面的散射特性。国内的相关研究中,西安工业大学的潘永强课题组<sup>[8-9]</sup>一直致力于薄膜散射特性的研究,发现在薄膜表面粗糙度及散射的众多影响因素(光学厚度、离子源能量、膜层相关性等)中,沉积速率和沉积角度的影响程度明显大于其他因素。因此,为了使 TiO<sub>2</sub> 薄膜散射损耗的研究更具系统性和完整性,本文将分别探究沉积速率和沉积角度对 TiO<sub>2</sub> 薄膜散射损耗的影响规律和机理。

首先,在表面粗糙度为 1.5 nm 的玻璃基底上,以不同的沉积速率镀制光学厚度为  $\lambda/4$  ( $\lambda$  为入射光波长)的 TiO<sub>2</sub> 薄膜,测量镀制之后薄膜的表面粗糙度和表面散射量,进而得到薄膜沉积速率、表面粗糙度和薄膜表面散射量之间的变化关系;然后,通过控制实验的基本参数保持不变,在仅改变入射沉积角的情况下,镀制光学厚度为  $\lambda/4$  的 TiO<sub>2</sub> 薄膜,测量镀制之后薄膜的表面粗糙度和表面散射量,进而得到不同薄膜表面粗糙度下薄膜表面散射量与散射角之间的变化关系。

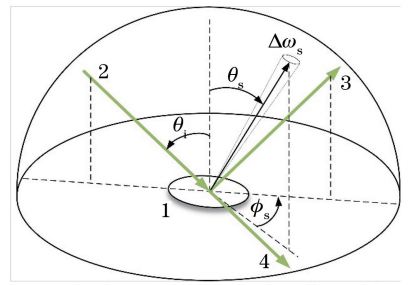
## 2 光学薄膜矢量散射理论

光学薄膜表面散射分布可通过角分辨散射(ARS)函数量化,该函数定义为散射光照射到单位立体角  $\Delta\omega_s$  内的光散射功率  $\Delta P_s$  与入射光功率  $P_i$  的比值,即

$$X_{\text{ARS}}(\theta_s, \varphi_s) = X_{\text{BRDF}} \cos \theta_s = \frac{\Delta P_s(\theta_s, \varphi_s)}{P_i \Delta\omega_s}, \quad (1)$$

式中:  $X_{\text{ARS}}$  为光学薄膜的表面散射量;  $X_{\text{BRDF}}$  为双向反射分布函数;  $\varphi_s$  和  $\theta_s$  分别为方位角和极化散射角。光散射的几何关系如图 1 所示。

在一阶微扰模型的理论基础上,将 ARS 函数用



1: sample; 2: incident beam; 3: reflected beam; 4: transmitted beam;  $\theta_i$ : incident angle

图 1 光散射几何关系

Fig. 1 Geometrical relationship of light scattering

于描述光学薄膜表面粗糙特性,而且此方法已经通过实验验证,具有较高的准确度<sup>[10-11]</sup>,但仅限于表面粗糙度  $\sigma$  远小于入射光波长,即满足  $\sigma \ll \lambda$  的光滑表面。与单层薄膜的散射相比,多层光学薄膜光散射特性的研究更为复杂,因为必须考虑多膜层之间的干涉效应。文献[12]给出了  $N$  层薄膜的 ARS 函数表达式,即

$$X_{\text{ARS}}(\varphi_s, \theta_s) = X_{\text{BRDF}} \cos \theta_s = \sum_{i=0}^N \sum_{j=0}^N F_i F_j^* X_{\text{PSD}_{ij}}(f_x, f_y), \quad (2)$$

式中:  $F_i$  为第  $i$  个界面处的光学因子;  $F_j^*$  为第  $j$  个界面处的共轭复合光学因子,其与多层薄膜内的场强分布密切相关,并包含有关光束偏振态、散射光分布和介电常数等信息;  $X_{\text{PSD}_{ij}}$  为功率谱密度函数,表示第  $i$  个界面的功率谱分析(PSD)函数( $i=j$ ),以及各膜层间的互相关属性( $i \neq j$ )。PSD 函数由薄膜表面轮廓确定,包含纵向和横向的粗糙度信息,它在空间频率( $f_x, f_y$ )范围内积分可得出方均根粗糙度  $\sigma$ 。

为了得到不同相关特性下散射的变化规律,将(2)式改写为

$$X_{\text{ARS}}(\varphi_s, \theta_s) = \sum_{i=0}^N |F_i|^2 X_{\text{PSD}_{ii}}(f_x, f_y) + \sum_{i=0}^N \sum_{j=0}^N F_i F_j^* X_{\text{PSD}_{ij}}(f_x, f_y). \quad (3)$$

(3)式中等号右边的第一项表示几个散射强度的简单迭加,第二项表示几个散射波场的相干迭加。如果多层膜中各个界面的粗糙度完全相同,即  $X_{\text{PSD}_{ii}}(f_x, f_y) = X_{\text{PSD}_{jj}}(f_x, f_y)$ ,则多层膜界面完全相关模型的散射表达式为

$$X_{\text{ARS}}(\varphi_s, \theta_s) = X_{\text{BRDF}} \cos \theta_s = \frac{dP}{P_i d\omega} = \left| \sum_{i=0}^N F_i \right|^2 X_{\text{PSD}}(f_x, f_y). \quad (4)$$

采用单层薄膜矢量散射模型进行理论计算,选用 K9 玻璃作为实验基底,其折射率为 1.52,表面粗糙度为 1.5 nm,相关长度为 1000 nm;在基底上镀制光学厚度为  $\lambda/4$  的单层  $\text{TiO}_2$  薄膜,计算波长  $\lambda=500$  nm,即理论膜厚度为 53.2 nm,入射角为  $30^\circ$ 。图 2 是以完全相关理论为模型,分别在薄膜表面粗糙度为 0.5, 1.0, 1.5, 2.0 nm 时计算得到的双向反射分布函数随散射角的变化曲线。

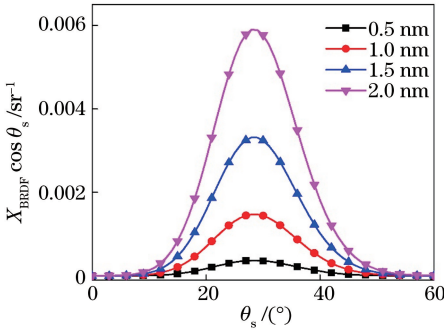


图 2 不同薄膜表面粗糙度的  $X_{\text{BRDF}} \cos \theta_s$  随散射角变化曲线

Fig. 2 Curves of  $X_{\text{BRDF}} \cos \theta_s$  changed with different scattering angles under different film surface roughnesses

从图 2 可以看出,随着  $\text{TiO}_2$  薄膜表面粗糙度的增大,表面散射曲线整体也在逐渐增大,且峰值处的变化最为明显,两者存在正相关关系。此外,当薄膜表面粗糙度小于基底表面粗糙度 1.5 nm 时,薄膜表面的散射曲线低于基底的散射曲线,即可实现减散射的效果。散射曲线随散射角的增大呈现出先增大后减小的趋势,其峰值点出现在  $30^\circ$  散射角附近,和入射角基本相同,这一现象与单层微粗糙界面的  $X_{\text{BRDF}}$  随散射角的变化规律相吻合。

### 3 实验探究及分析

本实验选用直径为 20 mm、折射率为 1.52 的

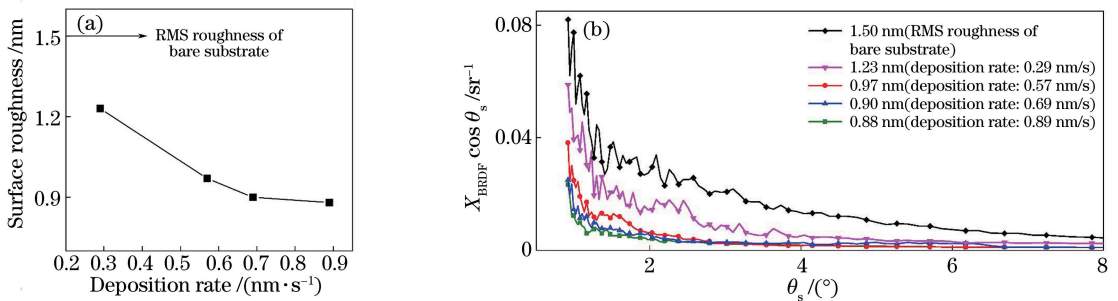


图 3 不同沉积速率下  $\text{TiO}_2$  薄膜的表面特性。(a)表面粗糙度与沉积速率的关系; (b)不同表面粗糙度下表面散射量与散射角的关系曲线

Fig. 3 Surface characteristics of  $\text{TiO}_2$  thin films at different deposition rates. (a) Relationship between surface roughness and deposition rate; (b) curves of surface scattering and scattering angle under different surface roughnesses

K9 玻璃作为基底,在实验开始前先对基底表面粗糙度进行测量,使用的测量仪器是英国泰勒-霍普森有限公司生产的 TalysurfCCI 白光干涉表面轮廓仪,将所有基底按照粗糙度的大小进行分类,最终从 50 个基片中选取 16 个作为实验基底,其表面粗糙度为 1.5 nm 左右,误差不超过 0.1 nm。为了保证实验结果的可靠性,在已选样品表面无明显缺陷的部位作标记,测量该点的裸基底表面粗糙度,以及镀膜之后该点的薄膜表面粗糙度以及散射分布。对同一位置进行三次测量,结果取平均值。

实验使用的镀膜机是国营南光机械厂生产的 ZZS700-1/G 箱式光学镀膜机,配备的离子源是西安工业大学自行研制的宽束冷阴极离子源,采用 Horos 散射仪测量薄膜的表面散射。实验基本参数如下:镀膜前的本底真空度为  $7.5 \times 10^{-3}$  Pa,充氧后的工作真空度为  $2.0 \times 10^{-2}$  Pa,监控波长为 500 nm,烘烤温度为常温,离子源能量为 400 eV,  $\text{TiO}_2$  薄膜的实际厚度约为 50 nm。

#### 3.1 沉积速率探究实验

本实验通过改变电子枪束流大小来实现沉积速率的调控,实验中记录沉积光学厚度为  $\lambda/4$  的沉积时间,并利用椭圆偏仪测量实际膜层厚度,两者之比即为沉积速率。将筛选后的 8 个基片分 4 次放入真空腔室,每次 2 片,控制其他参数保持不变,调节电子枪束流分别为 80, 100, 120, 140 mA。

根据镀膜之后薄膜表面粗糙度以及散射量的测量结果,绘制出不同沉积速率下  $\text{TiO}_2$  薄膜的表面粗糙度与沉积速率的关系,以及不同表面粗糙度下表面散射量与散射角的关系曲线,如图 3 所示,其中 RMS 表示方均根。

从图 3(a)可以看出,随着沉积速率的增大,  $\text{TiO}_2$  薄膜表面的方均根粗糙度逐渐减小,最终趋于 0.88 nm,且实验值均小于基底表面粗糙度,可见  $\text{TiO}_2$  薄膜具有平滑基底的作用。从薄膜成型的微观角度来看,沉积速率越大,蒸发的膜料分子具有的动能就越大,在基底表面作迁移运动的速率越大,从而加速了薄膜的成核,使镀制的膜层更加均匀致密,宏观上则表现为薄膜表面粗糙度减小,但膜层表面粗糙度不会因此而一直减小,最终将会趋于平缓。

为了与实验数据进行对比分析,本研究特意在图 3(b)中加了一组表面粗糙度为 1.5 nm 的裸基底表面散射曲线。从图 3(b)可以看出,  $\text{TiO}_2$  薄膜的表面粗糙度不同,所测得的表面散射量也不尽相同,虽然实验数据中局部有起伏,个别值偏差较大,但整体散射量的差异非常明显。对比实验中的 5 组数据不难发现,薄膜表面粗糙度越小,其表面散射量也越小,且能够将薄膜的表面散射量降低到裸基底的表面散射量以下,实现减散射的效果。当表面粗糙度

相差较大时,表面散射量的差异也较为明显;当表面粗糙度比较接近时,其散射量也相互接近。两者之间存在正相关的关系。在薄膜的沉积过程中,形成的薄膜厚度越均匀,膜层致密度越大,表面就会越光滑,从而引起的表面散射量就越小。表面粗糙度越大,微观表现为表面不光滑,有较多沟壑,所以在各个方向上引起的散射量就会越大。

### 3.2 沉积角探究实验

本实验在采用不同角度沉积薄膜时,是在工件架不旋转的情况下,在蒸发源的正上方,将被镀元件固定在所需沉积角度的斜面夹具上,以保证角度的准确性。电子枪束流设置为 100 mA。将已筛选的 8 个基片分 4 组放入真空腔室,每组 2 片,分别探究了  $0^\circ$ 、 $20^\circ$ 、 $40^\circ$ 、 $60^\circ$  这 4 个沉积角度下单层  $\text{TiO}_2$  薄膜的散射特性。根据镀膜之后薄膜表面粗糙度以及表面散射量的测量结果,绘制了不同沉积角度下  $\text{TiO}_2$  薄膜表面粗糙度与沉积角的关系,以及不同表面粗糙度下表面散射量与散射角的关系曲线,如图 4 所示。

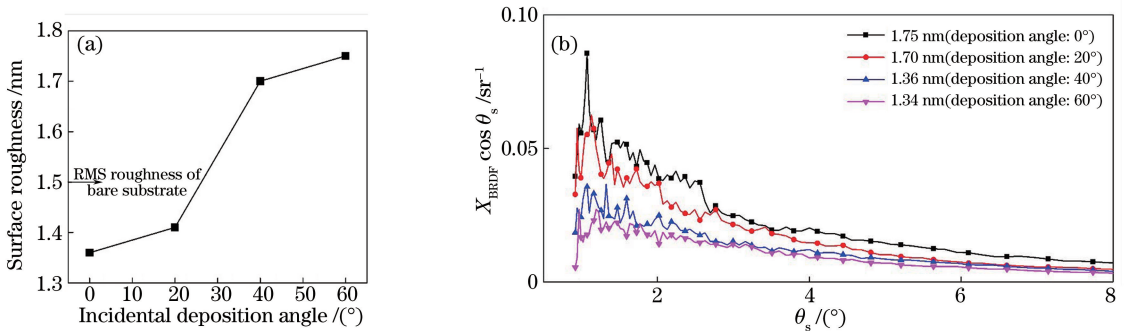


图 4 不同沉积角度下  $\text{TiO}_2$  薄膜的表面特性。(a)表面粗糙度与入射沉积角的关系;  
(b)不同表面粗糙度下表面散射与散射角的关系曲线

Fig. 4 Surface characteristics of  $\text{TiO}_2$  thin films at different deposition angles. (a) Relationship between surface roughness and incident deposition angle; (b) curves of surface scattering and scattering angle under different surface roughnesses

从图 4(a)可以看出,随着入射沉积角度增大,所沉积的单层  $\text{TiO}_2$  薄膜表面粗糙度也逐渐增大,但 4 组数据的增加幅度却不相同,对比  $0^\circ$  和  $20^\circ$ 、 $40^\circ$  和  $60^\circ$  这两组数据发现,表面粗糙度较接近,增幅较小,而  $20^\circ$  和  $40^\circ$  这组数据的增幅较大。当沉积角度较小时,单层  $\text{TiO}_2$  薄膜具有平滑基底的作用,可以减小基底表面粗糙度,当沉积角度增大到  $40^\circ$  时,薄膜表面粗糙度将大于基底表面粗糙度,不再具有平滑基底的作用。其主要原因是:与正常沉积工艺相比,增大入射沉积角将导致膜料原子在基底表面作横向迁移运动的速率逐渐减小,局部膜料厚度起伏不均匀,并且还会遮挡随后沉积的膜料原子,使这种不均匀愈发严重,从而导致薄膜表面粗糙度随着沉

积角度的增大而增大。

在改变入射沉积角的情况下沉积  $\text{TiO}_2$  薄膜,薄膜表面粗糙度不同,所测得的散射分布也不相同,虽然图 4(b)中的 4 组数据之间局部有差异,个别值偏差较大,但散射曲线的整体趋势较为稳定,每组数据之间的整体差异较为明显。对比这 4 组数据不难发现,虽然采用不同的沉积工艺镀制  $\text{TiO}_2$  薄膜,但是最终能够得出相同的规律:薄膜表面散射随表面粗糙度的增大而增大,两者具有正相关关系。由此可见,理论计算结果和实验结果相吻合。

## 4 结 论

根据光学薄膜矢量光散射理论,利用双向反射

分布函数,从理论上分析了 TiO<sub>2</sub> 薄膜表面粗糙度对其散射的影响规律;并通过设计相关实验,分别探究在两种不同沉积工艺下(沉积速率和入射沉积角),单层 TiO<sub>2</sub> 薄膜表面粗糙度对其表面散射的影响规律。根据理论计算和实验结果得出以下结论:

1) 不同沉积工艺将对薄膜表面粗糙度具有不同的影响规律;利用不同沉积速率沉积 TiO<sub>2</sub> 薄膜,随着沉积速率增大,薄膜表面粗糙度逐渐减小,但其降幅最终会趋于平缓,表明 TiO<sub>2</sub> 薄膜可以降低基底表面粗糙度,具有平滑基底的作用;利用不同入射沉积角度镀制 TiO<sub>2</sub> 薄膜,薄膜表面粗糙度则会随沉积角度的增大而增大,当入射角度较小时,薄膜表面粗糙度小于基底粗糙度,当入射角度达到 40°时,表面粗糙度明显大于基底粗糙度。

2) 虽然不同沉积工艺对薄膜表面粗糙度的影响不同,但薄膜表面粗糙度对表面散射的影响规律却相同;薄膜表面散射量随表面粗糙度的减小而降低,两者存在正相关关系;当薄膜表面粗糙度小于基底粗糙度时,薄膜表面的散射量也低于裸基底的表面散射量,可实现减散射的效果。

### 参 考 文 献

- [1] Niu Y B. Scatter properties study of reflector substrate in laser gyro[D]. Harbin: Harbin Institute of Technology, 2018: 1-7.  
牛玉宝. 激光陀螺反射镜基片的光学散射特性研究[D]. 哈尔滨: 哈尔滨工业大学, 2018: 1-7.
- [2] Li Z J. Noises in relic gravitational wave detecting experiment [D]. Wuhan: Huazhong University of Science and Technology, 2007: 26-34.  
李志军. 遗迹引力波探测实验中的噪声分析[D]. 武汉: 华中科技大学, 2007: 26-34.
- [3] Wang S T, Yang Y Y, Zhao L M, et al. Numerical simulation research on scattering light imaging of surface defects of optical components [J]. Chinese Journal of Lasers, 2015, 42(7): 0708005.  
王世通, 杨雨英, 赵丽敏, 等. 光学元件表面缺陷散射光成像数值模拟研究[J]. 中国激光, 2015, 42(7): 0708005.
- [4] Wu H, Zhang J L, Li G Z, et al. Theoretical research on volume scattering of thin films with single-layer columnar structure [J]. Acta Optica Sinica, 2016, 36(3): 0331001.  
吴晗, 张锦龙, 李刚正, 等. 单层柱状结构薄膜体散射的理论研究 [J]. 光学学报, 2016, 36(3): 0331001.
- [5] Harada T, Murotani H, Matumoto S, et al. Influence of substrate surface roughness on light scattering of TiO<sub>2</sub> optical thin films [J]. Chinese Optics Letters, 2013, 11(Suppl.): S10303.
- [6] Schröder S, Herffurth T, Trost M, et al. Angle-resolved scattering and reflectance of extreme-ultraviolet multilayer coatings: measurement and analysis [J]. Applied Optics, 2010, 49(9): 1503-1512.
- [7] Schröder S, Trost M, Garrick M, et al. Origins of light scattering from thin film coatings [J]. Thin Solid Films, 2015, 592: 248-255.
- [8] Pan Y Q, Wu Z S, Hang L X. Optical thin films interfaces roughness cross-correlated properties and light scattering [J]. Chinese Journal of Lasers, 2008, 35(6): 916-920.  
潘永强, 吴振森, 杭凌侠. 光学薄膜界面粗糙度互相关特性与光散射 [J]. 中国激光, 2008, 35(6): 916-920.
- [9] Pan Y Q, Yang C. Study on surface roughness of titanium dioxide thin film [J]. Journal of Applied Optics, 2018, 39(3): 400-404.  
潘永强, 杨琛. 二氧化钛薄膜表面粗糙度研究 [J]. 应用光学, 2018, 39(3): 400-404.
- [10] Jacobson R D, Wilson S R, Al-Jumaily G A, et al. Microstructure characterization by angle-resolved scatter and comparison to measurements made by other techniques [J]. Applied Optics, 1992, 31(10): 1426-1435.
- [11] Duparré A, Ferre-Borrull J, Glielich S, et al. Surface characterization techniques for determining the root-mean-square roughness and power spectral densities of optical components [J]. Applied Optics, 2002, 41(1): 154-171.
- [12] Duparré A, Kassam S. Relation between light scattering and the microstructure of optical thin films [J]. Applied Optics, 1993, 32(28): 5475-5480.