

# 利用 P-偏振光双面反射法测量 多层膜的光学参数

刘晓林 梁培辉 张伟清 唐永兴 孙今人  
(中国科学院上海光学精密机械研究所, 上海 201800)

**摘 要** 利用 P-偏振光双面反射法测量了浸泡提拉法制备的“有机硅树脂-二氧化硅-有机硅树脂”三层膜样品两面 P-偏振光反射光强比  $\gamma$  与入射角  $\theta$  关系曲线, 经过数据拟合, 确定了这三层薄膜的光学参数, 同时研究了薄膜间的相互作用层的光学参数。测量结果表明此方法可能成为研究薄膜和膜层之间相互作用的一种新手段。

**关键词** P-偏振光, 反射比, 多层膜系, 光学参数。

## 1 引 言

近年来溶胶-凝胶法制备的二氧化硅增透膜在高功率激光系统上得到广泛的应用<sup>[1-3]</sup>, 由于其独特的高激光损伤阈值和低成本等优良特性<sup>[4]</sup>, 倍受人们的关注。对于 KDP 倍频晶体, 为了防止晶体潮解, 还需在晶体表面涂制防潮膜。通常选定硅树脂材料涂制防潮膜<sup>[5-7]</sup>, 溶胶-凝胶法制备的 SiO<sub>2</sub> 材料涂制增透膜。

椭偏仪是测量薄膜光学参数的常用方法。然而对于一些存在多层膜系的光学元件, 用椭偏仪对它们的光学参数同时进行测量较为困难。同样, 对某些吸收小的光学薄膜, 通常情况下, 薄膜的微弱吸收可以忽略不计。但在考虑强光作用下膜层的激光损伤时, 其光吸收应该加以考虑, 而用椭偏仪测量消光系数很小的光学薄膜也不方便<sup>[8,9]</sup>。针对浸泡提拉法制备的双面多层膜系, 特别是需通过“制膜-热处理-制膜”多次循环方式制备的多层膜系, 采用 P-偏振光双面反射法对其光学参数进行测量可能更为方便。

在文献[10]中, 本文作者采用 P-偏振光双面反射法对玻璃表面层的光学参数分布进行了研究。其原理是利用光强为  $I_0$  的光束以入射角  $\theta$  入射到样品表面上(入射介质和出射介质相同), 样品的前后表面的反射光强  $I_a$  和  $I_b$  之比  $\gamma$  与入射角和膜层的光学参数密切相关。依据薄膜光学导纳理论<sup>[11]</sup>, 计算  $\gamma \sim \theta$  曲线, 将它与实验测得的  $\gamma \sim \theta$  曲线进行拟合, 从而获得膜层的厚度  $d_r$ 、折射率  $n_r$  和消光系数  $k_r$  等参数。

本文利用这种方法对浸泡提拉法制备的“有机硅树脂-二氧化硅-有机硅树脂”三层膜系的光学参数进行了测量, 并研究了薄膜间的相互作用层的光学参数。结果表明此方法为研究多层膜和膜层之间的相互作用提供了一种新的手段。

### 2 数值模拟

为了叙述方便起见，以单层膜进行数值模拟，其定性结果对多层膜系亦成立。首先计算  $\theta_B$  附近的  $\gamma$  值，对  $\gamma \sim \theta_i$  曲线变化情况的分析为利用数据拟合来确定薄膜参数提供了方便。

定义:

$$\begin{aligned} \delta n &\equiv n_f - n_s \\ \delta \theta &\equiv \theta_p - \theta_B \end{aligned} \tag{1}$$

其中  $\theta_p$  是对应于  $\gamma_{\max}$  或  $\gamma_{\min}$  的入射角。

由图 1 可以清楚地看到，当膜层厚度  $d_f$  和消光系数  $k_f$  不变时，随着折射率  $n_f$  的增大， $\delta \theta$  单调增加。当  $\delta n > 0$  时， $\theta_p > \theta_B$ ；当  $\delta n < 0$  时， $\theta_p < \theta_B$ 。 $|\delta \theta|$  随着  $|\delta n|$  的增加而增加。另一方面，随着  $|\delta n|$  的增大， $\gamma_{\max}$  或  $\gamma_{\min}$  的变化迅速，也就是说  $\gamma_{\max}$  或  $\gamma_{\min}$  和  $|\delta \theta|$  对  $n_f$  的变化较灵敏，且  $|\delta \theta|$  主要取决于  $n_f$ 。

图2反映了  $\gamma \sim \theta_i$  曲线随  $k_f$  的变化情况。与图 1 相比，图 2 中  $|\delta \theta|$  的变化很小， $|\delta \theta|$  随消光系数  $k_f$  的增大而减小。 $\gamma_{\max}$  或  $\gamma_{\min}$  的大小主要决定于  $k_f$ 。在数据拟合时，可以由  $\gamma_{\max}$  或  $\gamma_{\min}$  的大小来初步确定  $k_f$  的大小。同时，由  $\gamma_{\max}$  或  $\gamma_{\min}$  的大小变化可以得出，用这种方法可以测量小吸收系数的薄膜的参数。

$\gamma \sim \theta_i$  曲线与薄膜厚度  $d_f$  的关系如图 3 所示。 $d_f$  的变化对  $|\delta \theta|$  的影响很小，但对  $\gamma \sim \theta_i$  曲线的形状影响较大，这为在进行数据拟合时迅速确定膜层的厚度提供了方便。若在更大的  $d_f$  范围内计算  $\gamma \sim \theta_i$  曲线，将会出现多峰特性，这是薄

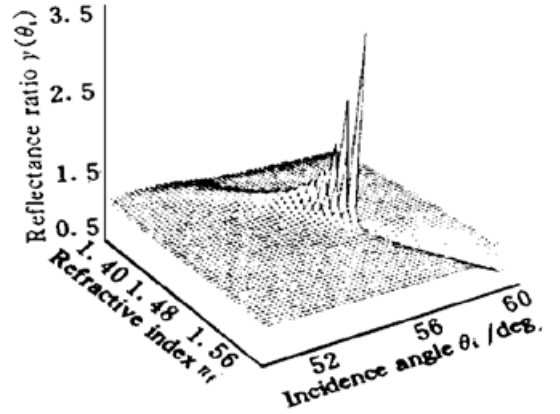


Fig. 1 Dependence of  $\gamma$  on  $\theta_i$  for  $n_f$  ranging from 1.4 to 1.6 ( $n_s = 1.5163$ )

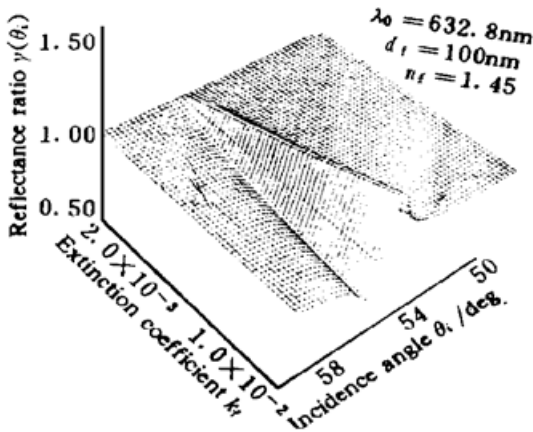


Fig. 2 Dependence of  $\gamma$  on  $\theta_i$  for  $k_f$  ranging from 0 to  $1 \times 10^{-2}$  ( $n_s = 1.5163$ )

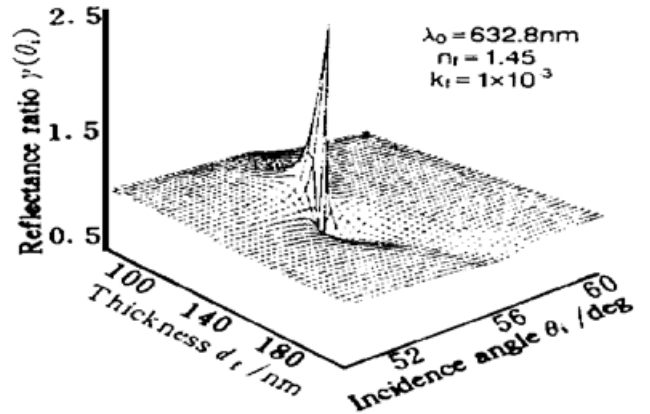


Fig. 3 Dependence of  $\gamma$  on  $\theta_i$  for  $d_f$  ranging from 60 nm to 220 nm ( $n_s = 1.5163$ )

膜干涉效应所造成的。根据薄膜干涉理论，在不考虑吸收的情况下，膜厚相差

$$\Delta d_f = \lambda_0 / 2n_f \cos \theta_i \tag{2}$$

的膜层其反射率和透射率相等。由于这种多峰特性，为确定膜层的厚度，实验中至少在两个不同的入射波长分别测量  $\gamma \sim \theta_i$  曲线。

对于相同光学厚度的不同膜层，当考虑吸收时，计算结果表明  $\gamma \sim \theta_i$  曲线峰值的大小和位置不同。由图 3 可知，膜层的物理厚度对  $\gamma \sim \theta_i$  曲线的形状影响较大。对于具有相同的等效光学厚度的多层膜，各膜层参数的变化都将导致  $\gamma \sim \theta_i$  曲线的变化。因此，由多层膜拟合所

得的膜层参数具有唯一性。

### 3 实验和结果

实验装置如图4所示, 光源为连续激光, 实验中分别使用波长为632.8 nm 的 He-Ne 和 488 nm 的 Ar<sup>+</sup> 激光器, 起偏器用消光比为10<sup>-6</sup>的洛匈棱镜。样品前后表面的两反射光束用 CCD 探测。样品和探测器置于一个  $\theta-2\theta$  机械联动的转动载物台上, 样品转动  $\theta$  角时, 探测器转动  $2\theta$  角。测量精度主要取决于激光器功率、模式的稳定性和入射角的精度。实验中对  $I_a$  和  $I_b$  进行同时测量, 这样避免了由于功率和模式不稳定所带来的测量误差。转动载物台的读数精度为0.1°, 由此产生的测量误差低于0.2%。总体说来, 此装置的测量精度为0.2%左右。

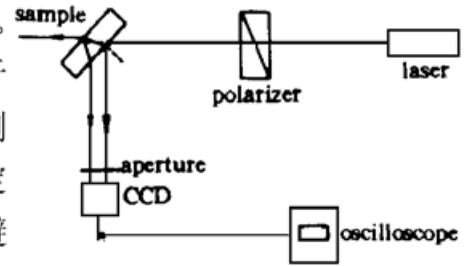


Fig. 4 Schematic diagram of experimental arrangement

由于激光束的发散性对入射角的测量精度会产生影响, 所以在数据拟合时, 应该对每个入射角所对应的  $\gamma$  值作一次统计修正。实验中所用 He-Ne 和 Ar<sup>+</sup> 激光器的发散角分别为2 mrad 和0.78 mrad。统计修正结果表明<sup>[10]</sup>, 在此实验条件下不会影响实验和数据拟合结果。

基片为  $\phi 50 \text{ mm} \times 5 \text{ mm}$  的 K9 平行平板光学玻璃, 使得在探测器的位置两反射光束容易分开。对波长为632.8 nm 和488 nm 的入射光, 基片的折射率分别为1.5163和1.52195。样品的三层膜均使用浸泡提拉法制备, 涂膜材料分别采用有机硅树脂材料<sup>[7]</sup>和二氧化硅<sup>[3]</sup>(碱催化溶胶-凝胶制备的涂膜液)。首先在基片上涂制有机硅树脂膜(第一层), 提拉速率为3 cm/min, 将它置于烘箱中烘烤8小时, 烘烤温度为180°C。然后在其上涂制二氧化硅膜(第二层), 提拉速率为10 cm/min, 并在室温下干燥24小时。最后用与制备第一层有机硅树脂膜相同的条件制备了第二层有机硅树脂膜(即整个膜系的第三层膜)。

用图4所示的装置测量了样品的反射光强度比与入射角的关系曲线, 结果如图5所示。为了了解制成多层膜后每层膜的变化情况, 利用椭偏仪对单层有机硅树脂膜和 SiO<sub>2</sub>膜分别进行

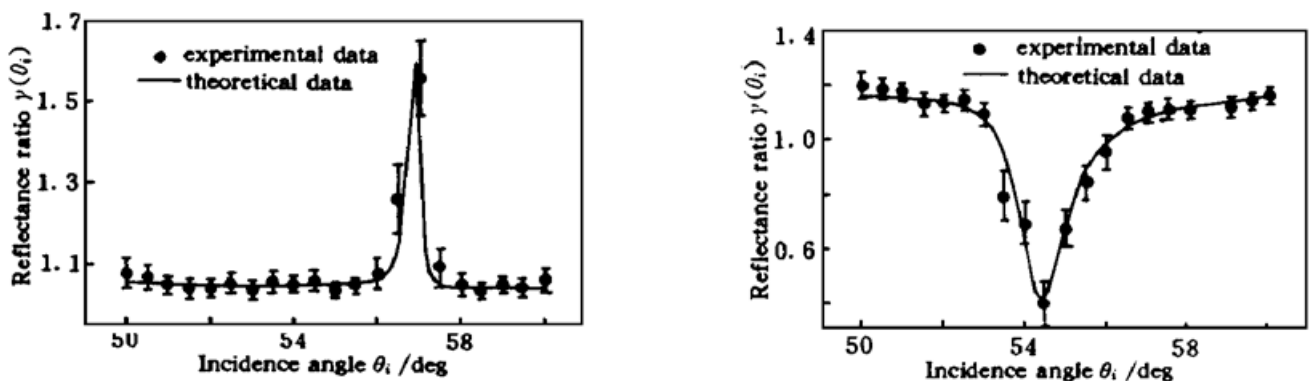


Fig. 5 Experimental and theoretical results for different incident beams.

(a) For  $\lambda_0 = 632.8 \text{ nm}$ , (b) For  $\lambda_0 = 488 \text{ nm}$

了测量 ( $\lambda_0 = 632.8 \text{ nm}$ ), 结果如下:

有机硅树脂	$n_t = 1.412,$	$d_t = 143 \text{ nm};$
SiO <sub>2</sub>	$n_t = 1.210.$	$d_t = 241 \text{ nm}.$

根据实验所测得的结果进行数据拟合。拟合过程中发现, 仅以“有机硅树脂-二氧化硅-有机硅树脂”形式的三层膜来拟合, 难以得到满意的结果。这是由于膜层间的扩散, 使得相邻膜

层之间形成了两个相互作用层(第一、二层膜间的相互作用层称为第一界面层;第二、三层膜间的相互作用层称为第二界面层)。所以这种三层膜实际上相当于五层膜。利用五层膜系模型,对实验数据进行了拟合,结果如图5所示。表1列出了各膜层和两个相互作用层的光学参数。从表1的结果可以看出:

Table 1. The parameters of the layers

wavelength parameters	632.8/nm			488/nm		
	$n_f$	$k_f/10^{-4}$	$d_f/\text{nm}$	$n_f$	$k_f/10^{-3}$	$d_f/\text{nm}$
the first layer	1.415	9.0	126	1.450	2.9	126
the first layer of interface	1.372	7.3	12	1.418	2.6	12
the second layer	1.213	3.1	225	1.272	2.0	225
the second layer of interface	1.348	6.2	19	1.383	2.4	19
the third layer	1.412	8.9	132	1.441	2.8	132

1) 与单层膜相比,第一、二层膜的折射率略有增加,第三层膜折射率与单层膜的一致,三层膜的总厚度较单独三层膜的厚度之和要小。这可能是由于热处理的次数不同造成膜层的致密度不同所造成的。

2) 第一界面层的折射率大于第二界面层的折射率,因为第一界面层经过两次加热处理,进一步提高了膜层的致密度。第一界面层的厚度较第二界面层小,可能是由于在制备第二层二氧化硅膜以前,经过了热处理,第一层膜的扩散较小而形成的界面层厚度也就小。第一界面层的吸收较第二界面层大,由表1的数据可以看到,有机硅树脂的吸收大于二氧化硅,说明前者的有机硅树脂含量较高,而第二界面层是第二、三两层软膜之间的扩散所形成的,两种材料的含量较为接近。

**结 论** 利用P-偏振光双面反射法测量了浸泡提拉法制备的“有机硅树脂-二氧化硅-有机硅树脂”三层膜样品两面P-偏振光反射光强比 $\gamma$ 与入射角 $\theta$ 的关系曲线,经数据拟合,获得了膜层和膜层间的相互作用层的光学参数,这为研究薄膜及膜层间的相互作用提供了一种新的手段。通过实验装置的精密化和拟合模型的改进,此方法在薄膜测量和界面层的分析等方面可能得到进一步的应用。

### 参 考 文 献

- [1] I. M. Thomas, High laser damage threshold porous silica antireflective coatings. *Appl. Opt.*, 1986, **25**(9) ·1481~ 1483
- [2] H. G. Floch, J. J. Priotton, Colloidal sol-gel optical coatings. *American Ceramic Society Bulletin*, 1990, **69**(7) ·1141~ 1143
- [3] 张伟清, 朱从善, 章泉兴等, 高激光负载多孔二氧化硅增透膜的研制. *中国激光*, 1993, **A20**(12) ·916 ~ 920
- [4] R. Roux, High-energy lasers sol-gel coating benefits megajoule laser. *Laser Focus World*, 1995, **31**(5) ·53~ 55
- [5] I. M. Thomas, Optical and environmentally protective coatings for potassium dihydrogen phosphate (KDP) harmonic converter crystals. *Proc. SPIE*, 1991, **1561** ·70~ 82

- [6] P. Innocenzi, Methyltriethoxysilane derived coating for optical applications. *Proc. SPIE*, 1994, **2288** ·87~ 95
- [7] Y. X. Tang, W. Q. Zhang, W. P. Zhou *et al.*, Study of organic silicon resin protective coating with high laser damage threshold for KDP crystal. *Chines J. Laser*, 1994, **B3**(5) ·469~ 474
- [8] G. E. Jellison, Jr., B. C. Sales, Determination of the optical functions of transparent glasses by using spectroscopic ellipsometry. *Appl. Opt.*, 1991, **30**(30) ·4310~ 4315
- [9] B. Dugnoille, O. Vilet, Optical profile of surface layers on a float glass determined by ellipsometry. *Appl. Opt.*, 1994, **33**(25) ·5853~ 5858
- [10] 刘晓林, 梁培辉, 张伟清等, 玻璃表面层光学参数分布的研究. *光学学报*, 1997, **17**(8) ·1124~ 1129
- [11] 唐晋发, 郑权编著, 应用薄膜光学. 上海, 上海科学技术出版社, 1984 ·73~ 77

## Measurement of the Parameters of Multi-Layer Coating by P-Polarized Reflectances

Liu Xiaolin    Liang Peihui    Zhang Weiqing    Tang Yongxing    Sun Jinren  
(Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, The Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201800)

(Received 20 March 1997; revised 27 June 1997)

**Abstract** Using the P-polarized reflectances, we measured the incidence angle versus the reflectance ratio  $\mathcal{Y}$  of a three-layer coating (such as “organic silicon resin-SiO<sub>2</sub>-organic silicon resin”) formed by dip-coating. The optical parameters of those layers of the coating were obtained by means of data fitting. At the same time, the optical parameters of the interfaces between two coatings were investigated.

**Key words** P-polarized light, reflectance ratio, multi-layer film, optical parameters.