

文章编号: 0253-2239(2006)07-1102-5

光学薄膜的分层界面散射模型

侯海虹^{1,2} 沈 健^{1,2} 沈自才^{1,2} 邵建达¹ 易 葵¹ 范正修¹

(¹ 中国科学院上海光学精密机械研究所, 上海 201800)
(² 中国科学院研究生院, 北京 100039)

摘要: 提出了一种计算光学介质膜系表面总积分散射(TIS)的理论模型。该模型认为,介质膜系粗糙的膜层界面和表面为微观结构不均匀的微薄过渡区;过渡区可用折射率为不同常量的层数足够多的均匀子层来代替,同时这些均匀子层的折射率变化满足指数函数的分布规律。利用矩阵法对积分散射的表达式进行了推导。对于电子束蒸发方法在K9玻璃上沉积的ZrO₂单层膜,分层界面散射模型对积分散射的理论计算值要比非相关表面散射模型的计算值更加符合总积分散射仪的实验测量结果。

关键词: 薄膜光学; 表面散射模型; 矩阵法; 总积分散射

中图分类号: O484 文献标识码: A

Stratified-Interface Scattering Model for Multilayer Optical Coatings

Hou Haihong^{1,2} Shen Jian^{1,2} Shen Zicai^{1,2} Shao Jianda¹ Yi Kui¹ Fan Zhengxiu¹

(¹ Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, the Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201800)
(² Graduate School of the Chinese Academy of Sciences, Beijing 100039)

Abstract: A theoretical model calculating the surface total integrated scattering (TIS) of multilayer optical coatings is presented. The new model assumes that the rough interface and surface of the coatings are very thin zones with inhomogeneous micro structure, which can be substituted by adequate number of homogeneous sub-layers, refractive indexes of which are constant and meet the exponential distribution. The formula of TIS is deduced by using the matrix method. For ZrO₂ coatings deposited on K9 glasses by the electronic beam evaporation method, the TIS result calculated by the new model is in better conformity with the measured value by the scatterometer than that by the uncorrelated surface roughness model.

Key words: thin film optics; surface scattering model; matrix method; total integrated scattering

1 引 言

光学薄膜的散射分为表面散射和体内散射。表面散射主要由粗糙表面的不规则程度引起,体散射则与基片内部结构的不均匀性相关。二者中,表面散射对薄膜性能的影响起主要作用^[1~3]。以标量散射理论为基础,人们建立了不同的散射模型来研究光学薄膜的表面散射问题,如 Beckman 和 Spizzichino 的单层粗糙界面标量散射理论^[4], Eastman 的非相关表面粗糙度模型和恒等膜系模型^[5], Carniglia 的附加表面粗糙度模型^[6], 等等。这些模型只考虑了不同均匀介质通过具有不同均方

根(rms)粗糙度的随机分布界面互相连接的情况,并认为光波通过界面时介质的性质发生突变,即假设在膜层的整个厚度 d 内,折射率 n 是一个常数。但实际上,当在粗糙光学表面上沉积薄膜时,由于粗糙表面非规则结构的相关长度通常远大于膜料分子的尺寸,沉积初始时膜料分子必然会先填充粗糙表面,然后逐层累积,直至形成结构均匀的膜层。这样,粗糙表面和均匀膜层之间会形成非均匀的过渡层,此过渡层的折射率具有渐变行为,沉积初始时与粗糙表面的折射率相同,沉积结束后则等于均匀膜层的折射率。这些过渡性的非均匀界面膜层将会对

作者简介: 侯海虹(1976~),女,山东人,中国科学院上海光学精密机械研究所博士研究生,主要从事光学薄膜表面散射的研究。E-mail: haihonghou@siom.ac.cn

收稿日期: 2005-08-19; 收到修改稿日期: 2005-12-10

薄膜的光学性能产生严重影响^[7]。

考虑到上述现象,本文提出了一种新的散射模型,认为光学薄膜中两相邻膜层间的界面为结构不均匀的微薄过渡区,此过渡区可以用层数足够多的均匀子层来代替,其中每个均匀子层的折射率均为常量。这样原来具有不均匀界面的膜系就变成了具有光滑界面的多层膜结构。根据矩阵方法^[5,6],可以方便地推导出光学薄膜的表面总积分散射(TIS)的表达式。利用自行设计的总积分散射仪对电子束蒸发方法制备的 ZrO_2 薄膜的总积分散射进行了测量,模型的理论计算结果与实验结果较为一致。

2 模型描述

图1给出了折射率为 n_i 和 n_j 的两种相邻介质之间的非均匀粗糙界面结构示意图。设界面厚度为 h ,沿 z 轴方向可将粗糙界面分成厚度相等的 m 层均匀子层(设 m 足够大),这些均匀子层之间的界面为完全光滑的。在垂直于 z 轴的方向上,每个均匀子层的折射率均为常量,依次为 $n_1, n_2, n_3, \dots, n_{m-1}$,

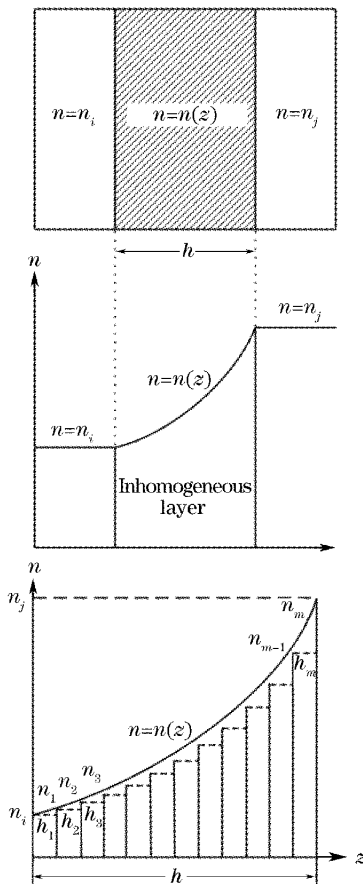


图1 非均匀粗糙界面的分层原理图

Fig. 1 Schematic diagram of the inhomogeneous stratified rough interface

而在平行于 z 轴的方向上,这些均匀子层的折射率各不相同。由于薄膜形成原因不同,非均匀界面的折射率分布可能会呈现出不同的分布规律,如指数型、线型、双曲函数型等等^[8~10],其中线形剖面或指数剖面可以粗略地假设为一个自然过渡层,它们常常被作为研究非均匀膜层光谱特性的基本模型^[11]。另一方面,前期所做工作也证明,在电子束蒸镀薄膜初期,可以认为基底和薄膜界面处存在一个过渡层,近似为线形变化,折射率大小介于薄膜和基底折射率之间^[12]。基于上述两点,同时考虑到线形变化仅为指数变化的一种特殊情况,认为呈指数型分布的非均匀界面折射率将会更具代表性。设所有均匀子层的折射率沿着 z 轴方向构成指数函数 n_k

$$n_k = n_i \left(\frac{n_j}{n_i} \right)^{k/(m+1)}, \quad (1)$$

$$k = 1, 2, 3, \dots, m-1, m$$

由(1)式可知,当 $k = 0$ 和 $k = m+1$ 时,分别对应 $n_0 = n_i$ 和 $n_{m+1} = n_j$ 。这样,经过分层近似后,原来含有不均匀粗糙界面的膜系结构就变成了具有光滑界面的多层均匀介质膜结构。对于所划分的 m 个均匀子层,各层厚度相等,为

$$h_k = h/m. \quad k = 1, 2, 3, \dots, m-1, m \quad (2)$$

3 粗糙界面的厚度估算

在分层界面模型中,非均匀层厚度 h 是一个非常重要的基本参量,通过直接测量的方法很难获得其数值。实际上,可利用光学轮廓仪或原子力显微镜等仪器^[13~15]先测得粗糙界面的均方根粗糙度 σ ,然后再根据 σ 的数值近似估算出 h 的大小。

图2为一粗糙界面, $z = z(x)$ 表示界面轮廓在垂直于 x 轴方向上的高度起伏变化。平面 $z = 0$ 代表粗糙界面的平均高度,其数学定义式如下:

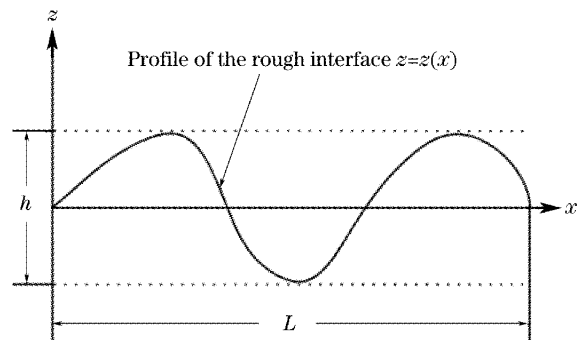


图2 厚度为 h 的粗糙界面轮廓图

Fig. 2 Profile of the rough interface with the thickness h

$$\sum_{i=1}^N z_i(x_i) = 0, \quad (3)$$

其中 N 表示沿长度 L 选取的等间距点的数目。

均方根粗糙度 σ 被定义为长度为 L 的粗糙界面上 N 个等间距点所对应 z 值的平方的平均值的平方根, 即

$$\sigma = \sqrt{\frac{1}{N} \sum_{i=1}^N [z_i(x_i)]^2}. \quad (4)$$

由图 2 可知, 粗糙界面的厚度应该是其轮廓起伏曲线 $z(x)$ 的最大值和最小值之间的垂直距离(即两条包络虚线之间的垂直间距 h)。

考虑界面轮廓曲线呈正弦分布的情况, 此时有

$$z(x) = \sin x, \quad (5)$$

根据(4)式, 可以推算出(5)式中正弦函数的 σ 值为 0.707, 又知正弦函数最大值和最小值之间的间距为 2, 故可得到以下近似关系式:

$$\sigma/h \approx 0.707/2. \quad (6)$$

对于表面轮廓起伏接近于正弦函数曲线分布的粗糙界面, 其厚度 h 可根据界面均方根粗糙度 σ 求得。由(6)式可得

$$h \approx 2\sigma/0.707 = 2.83\sigma. \quad (7)$$

4 理论推导

采用矩阵法对多层膜的散射公式进行推导, 考虑到所研究介质膜系的特点和计算的简便, 用到以下近似:

1) 光线由薄膜一侧垂直入射; 2) 不考虑光线在膜系内的偏振效应; 3) 薄膜材料为非吸收介质, 即其折射率为实数; 4) 基片和薄膜的内部微观结构呈各向同性, 体散射被忽略; 5) 假设基片为半无限大。

4.1 均匀子层厚度和折射率的推导

考虑 g 层介质膜系, 将入射介质 n_0 与膜系顶层 n_1 的粗糙界面考虑在内, 膜系中共包含 $g+1$ 个粗糙界面。基片折射率为 n_s , $s = g+1$ 。自上而下, 设每个粗糙界面的均方根粗糙度分别为 $\sigma_1, \sigma_2, \sigma_3, \dots, \sigma_{g+1}$, 厚度依次为 $h_1, h_2, h_3, \dots, h_{g+1}$, 被划分的均匀子层数为 $m_1, m_2, m_3, \dots, m_{g+1}$ 。如第 2 节所述, 经过均匀层近似后, 含有 $g+1$ 个粗糙界面的初始 g 层膜系变成了各层折射率均为常量的界面光滑的理想多层膜系(见图 3), 新的膜层数为

$$m = \sum_{k=1}^{g+1} m_k + g. \quad (8)$$

根据第 3 节的推导, 可以得出 m 层理想膜系中各均匀子层的厚度和折射率, 例如, 对于介于 n_0 和 n_1 之

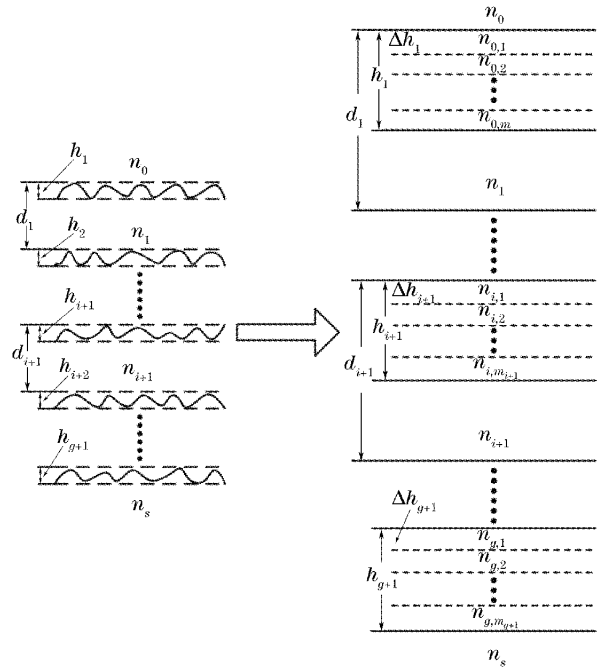


图 3 多层介质膜粗糙界面的分层原理图

Fig. 3 Schematic diagrams of the stratified rough interfaces of multilayer dielectric coatings

间的粗糙界面, 划分后的均匀子层的厚度为

$$\Delta h_1 = \frac{h_1}{m_1} = \frac{2.83\sigma_1}{m_1}, \quad (9)$$

折射率为

$$n_{0,k_1} = n_0 \left(\frac{n_1}{n_0} \right)^{k_1/(m_1+1)}. \quad (10)$$

($k_1 = 1, 2, 3, \dots, m_1$)

同理, 对于介于 n_i 和 n_{i+1} 之间的粗糙界面, 划分后的均匀子层的厚度为

$$\Delta h_{i+1} = \frac{h_{i+1}}{m_{i+1}} = \frac{2.83\sigma_{i+1}}{m_{i+1}}, \quad (11)$$

折射率为

$$n_{0,k_{i+1}} = n_i \left(\frac{n_{i+1}}{n_i} \right)^{k_{i+1}/(m_{i+1}+1)}. \quad (12)$$

($k_{i+1} = 1, 2, 3, \dots, m_{i+1}$)

依次类推, 对于介于 n_g 和 n_s 之间的粗糙界面, 划分后的均匀子层的厚度为

$$\Delta h_{g+1} = \frac{h_{g+1}}{m_{g+1}} = \frac{2.83\sigma_{g+1}}{m_{g+1}}, \quad (13)$$

折射率为

$$n_{0,k_{g+1}} = n_g \left(\frac{n_s}{n_g} \right)^{k_{g+1}/(m_{g+1}+1)}. \quad (14)$$

($k_{g+1} = 1, 2, 3, \dots, m_{g+1}$)

4.2 散射公式的矩阵求法^[5,6]

根据界面束流平衡方程, m 层理想膜系的入射波 E_0^+ , 反射波 E_0^- 和透射波 E_s^+ 的电场满足关系式

$$\begin{bmatrix} E_0^+ \\ E_0^- \end{bmatrix} = \mathbf{P} \begin{bmatrix} E_s^+ \\ 0 \end{bmatrix}, \quad (15)$$

其中矩阵 \mathbf{P} 为一系列矩阵的乘积

$$\mathbf{P} = \mathbf{I}_{0,1} \mathbf{T}_1 \mathbf{I}_{1,2} \mathbf{T}_2 \cdots \mathbf{T}_m \mathbf{I}_{m,s} = \begin{bmatrix} p_1 & p_3 \\ p_2 & p_4 \end{bmatrix}, \quad (16)$$

式中 $\mathbf{I}_{k,k+1}$ 表示第 k 层和第 $k+1$ 层之间的界面传播矩阵, 表达式为

$$\mathbf{I}_{k,k+1} = \frac{1}{t_{k,k+1}} \begin{bmatrix} 1 & r_{k,k+1} \\ t_{k,k+1} & 1 \end{bmatrix}, \quad (17)$$

$$k = 0, 1, 2, \dots, m-1, m$$

其中 $r_{k,k+1} = \frac{n_k - n_{k+1}}{n_k + n_{k+1}}$, $t_{k,k+1} = \frac{2n_k}{n_k + n_{k+1}}$ 分别为菲涅耳振幅反射系数和透射系数。

\mathbf{T}_k 为电场在第 k 层介质的传播矩阵, 由下式给出:

$$\mathbf{T}_k = \begin{bmatrix} \exp(i\phi_k) & 0 \\ 0 & \exp(-i\phi_k) \end{bmatrix}, \quad (18)$$

$$k = 1, 2, 3, \dots, m-1, m$$

其中 $\phi_k = \frac{2\pi}{\lambda} n_k d_k$ 为薄膜的相位厚度, λ 为入射波长。

多层膜系的振幅反射系数的定义式为

$$r = p_2/p_1, \quad (19)$$

能量反射率为

$$R = r \cdot r^*, \quad (20)$$

总积分散射的定义为

$$S_{\text{TI}} = (R_0 - R)/R_0, \quad (21)$$

其中 R_0 为膜系不存在粗糙界面时的能量反射率。

至此, 对含有粗糙界面多层膜系的散射特性的推导全部完成。通过整个推导过程可以看出, 总积分散射 S_{TI} 的大小最终取决于初始 g 层膜系中各层介

质的折射率 $n_1, n_2, n_3, \dots, n_g$, 厚度 $d_1, d_2, d_3, \dots, d_g$, 界面均方根粗糙度 $\sigma_1, \sigma_2, \sigma_3, \dots, \sigma_{g+1}$ 和每层粗糙界面中所划分的均匀子层数 $m_1, m_2, m_3, \dots, m_{g+1}$ 等参量。

5 结 果

5.1 样品的制备和基本参量表征

采用电子束蒸发工艺在 K9 玻璃衬底上沉积了单层 ZrO_2 薄膜, 实验本底真空和沉积压强分别为 2×10^{-3} Pa 和 1.0×10^{-2} Pa, 沉积温度为 200°C , 沉积过程中的控制波长为 621 nm。K9 玻璃和 ZrO_2 薄膜的表面均方根粗糙度通过 WYKO NT1100 型光学轮廓干涉仪进行测量。膜层的基本参量值由表 1 给出。其中 n_0, n_1 和 n_s 依次为入射介质(空气), 膜层和基底的折射率, σ_1 和 σ_2 分别代表空气-膜层和膜层-基片界面的均方根粗糙度, 膜层厚度为 d_1 。

表 1 ZrO_2 单层膜中的基本参量

Table 1 Primary parameters of the ZrO_2 single layer

n_0	n_1	n_s	d_1/nm	σ_1/nm	σ_2/nm
1.0	1.92	1.52	660	0.95	0.78

5.2 样品的总积分散射测量

利用自行设计的总积分散射仪^[16,17]测量 ZrO_2 薄膜的表面积分散射, 测量装置的原理如图 4 所示。光源波长为 632.8 nm, 样品表面探测光的光斑尺寸为 1 mm, 仪器测量的标准误差为 10^{-4} 量级。测量时沿样品上两条互相垂直的直线进行逐点扫描, 相邻取样点的间隔为 3 mm, 然后对所有测量值取平均, 所得积分散射值为 6.04×10^{-4} 。

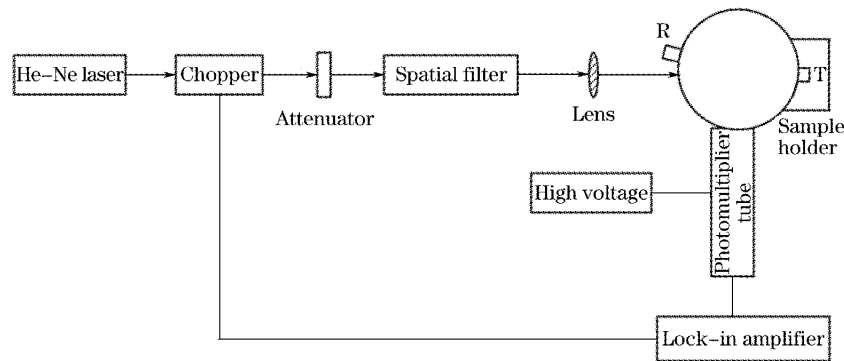


图 4 总积分散射仪结构原理图

Fig. 4 Schematic diagram of the total integrated scattering scatterometer

5.3 模型计算

利用分层界面散射模型进行计算时, 粗糙界面中

所划分的不同的均匀子层数 m 必然会对积分散射值产生一定的影响。可以判断, 无论 m 如何取值, 最后

所得的积分散射都应收敛于同一极值。设每次分层近似中,每个粗糙界面所包含均匀子层的层数相等。令表 1 中各参量值保持不变,取均匀子层数分别为 5,15,50,80,100,150 和 200,所得积分散射值由表 2 给出。可以看出,取 15 层以下的均匀膜近似时所得的结果相对于精确解有较大偏移,分层数为 50 时结果的近似程度较高,而分层数大于 80 后所得积分散射结果之间只有很小的差别,表明对于这种情况再多的分层已没有多大的实际意义。

表 2 均匀子层数目 m 与积分散射的关系

Table 2 Relations between the number of the stratified sublayers and the TIS value

m	5	15	50	80	100	150	200
$S_{TIS}/10^{-4}$	4.88	4.91	5.25	5.46	5.55	5.58	5.55

利用界面分层模型计算了 ZrO_2 薄膜样品在 632.8 nm 波长下的积分散射,令粗糙界面中的均匀子层数均为 200,最后所得结果为 5.55×10^{-4} 。作为比较,还利用文献[5,6]中的非相关表面粗糙度模型进行了计算,得到的值为 7.34×10^{-4} ,基本输入参量与界面分层模型中的完全相同。可见,界面分层模型的结果与实验结果更加接近,表明此模型能更加准确地预测样品的散射特性。

6 结 论

本文结合光学介质薄膜的实际沉积过程,以多层均匀膜来代替膜层的粗糙界面和表面,建立了一种可简便地计算光学介质薄膜表面总积分散射的分层界面散射模型。与其它散射模型相比,此模型能更准确地预测电子束蒸发工艺沉积的 ZrO_2 薄膜的表面散射特性。本文的工作仍为初步研究结果,因为模型还存在些许不足,例如,不适合膜系中包含吸收性介质的情况;仅仅考虑了光线垂直入射的情况;等等,这就是说,该模型只能在一定的范围内才能适用。要解决上述问题,还需对理论模型做进一步的深入研究,这将是本文的后续研究内容。

参 考 文 献

1 P. Bousquet, F. Flory, P. Roche. Scattering from multilayer thin films; theory and experiment[J]. *J. Opt. Soc. Am.*, 1981, **71**(9): 1115~1123

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

3 H. E. Bennett. Scattering characteristics of optical materials[J]. *Opt. Engng.*, 1978, **17**(5): 480~488

4 Beckmann P, Spizzichino A. *The Scattering of Electromagnetic Waves from Rough Surfaces* [M]. New York: Pergamon Press, 1963. 17~97

5 Jay M, Eastman. Scattering by all-dielectric multilayer bandpass filters and mirrors for lasers. *Physics of Thin Films, Advances in Research and Development* [M]. New York: Academic Press, 1978. 168~226

6 C. K. Carniglia. Scalar scattering theory for multilayer optical coatings[J]. *Opt. Engng.*, 1979, **18**(2): 104~115

7 A. V. Tikhonravov, M. K. Trubetskov, T. Brian *et al.*. Influence of small inhomogeneities on the spectral characteristics of single thin films[J]. *Appl. Opt.*, 1997, **36**(28): 7188~7198

8 Shen Zicai, Wang Yingjian, Fan Zhengxiu *et al.*. Analysis of deposition rate of inhomogeneous coatings prepared by co-evaporation[J]. *Acta Optica Sinica*, 2005, **25**(4): 561~566 (in Chinese)

沈自才,王英剑,范正修等. 共蒸法制备非均匀膜的速率控制分析[J]. *光学学报*, 2005, **25**(4): 561~566

9 A. V. Tikhonravov, J. A. Dobrowolski. Quasi-optimal synthesis for antireflection coatings; a new method[J]. *Appl. Opt.*, 1993, **32**(22): 4265~4275

10 Shen Zicai, Kong Weijin, Shao Jianda *et al.*. Modeling of influence of substrate surface defect on optical characteristics of single-layer coating[J]. *Chin. Phys. Lett.*, 2005, **22**(1): 224~226

11 Lin Yongchang, Lu Weiqiang. *Principles of Optical Thin Films* [M]. Beijing: National Defence Industry Press, 1990. 139~173 (in Chinese)

林永昌,卢维强. *光学薄膜原理* [M]. 北京: 国防工业出版社, 1990. 139~173

12 Shen Zicai, Song Yongxiang, Wang Yingjian *et al.*. Influence of inhomogeneities on the optic characteristics of single coatings[J]. *Acta Photonica Sinica*, 2005, **34**(10): 1526~1529 (in Chinese)

沈自才,宋永香,王英剑等. 非均匀性对单层膜光学特性的影响[J]. *光子学报*, 2005, **34**(10): 1526~1529

13 Jean M, Bennett. Comparison of techniques for measuring the roughness of optical surfaces[J]. *Opt. Engng.*, 1985, **24**(3): 380~387

14 A. Duparré, Josep Ferre-Borrull, Stefan Gliech *et al.*. Surface characterization techniques for determining the root-mean-square roughness and power spectral densities of optical components[J]. *Appl. Opt.*, 2002, **41**(1): 154~171

15 C. Deumié, R. Richier, P. Dumas *et al.*. Multiscale roughness in optical multilayers: atomic force microscopy and light scattering [J]. *Appl. Opt.*, 1996, **35**(28): 5583~5594

16 Haihong Hou, Kui Yi, Jianda Shao *et al.*. An instrument for surface roughness measurement of optical thin films[C]. *Proc. SPIE*, 2005, **5638**: 638~641

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

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