

单层柱状结构薄膜体散射的理论研究

吴 晗¹ 张锦龙¹ 李刚正² 孙英会²

¹同济大学先进微结构材料教育部重点实验室, 上海 200092

²光驰科技(上海)有限公司, 上海 201900

摘要 电子束蒸发的单层光学薄膜具有明显的柱状结构, 薄膜内部折射率的变化较大, 由此引起的体散射现象也较明显。基于一阶电磁微扰理论, 建立了单层光学薄膜的体散射理论模型, 分析了膜层厚度、入射光偏振态、柱状结构因子、非均质性对体散射的影响。研究了纯柱状结构下, 电子束蒸发的单层二氧化铪(HfO₂)薄膜体散射的角分布散射值(ARS)随着膜层厚度的变化规律, 结果表明纯柱状结构HfO₂薄膜体散射的ARS量级与表面散射完全非相关模型的ARS值相近, 并且在特定的膜厚范围内, 体散射的ARS值随着膜厚的增大而增大。对于非均质性薄膜, 当非均质性一定时, 体散射的ARS值随着膜厚的增大而增大; 当膜层厚度一定时, 体散射的ARS值随着非均质性绝对值的增大而减小。

关键词 薄膜; 体散射; 一阶微扰理论; 柱状结构因子; 非均质性

中图分类号 0439

文献标识码 A

doi: 10.3788/AOS201636.0331001

Theoretical Research on Volume Scattering of Thin Films with Single-Layer Columnar Structure

Wu Han¹ Zhang Jinlong¹ Li Gangzheng² Sun Yinghui²

¹Key Laboratory of Advanced Microstructure Materials of Ministry of Education, Tongji University, Shanghai 200092, China

²Optorun (Shanghai) Co, Ltd, Shanghai 201900, China

Abstract Single-layer optical film prepared by electron beam evaporation possesses remarkable columnar structure. The variation of its internal film refractive index is large, so the induced volume scattering phenomenon is relatively obvious. Based on the first-order electromagnetic perturbation theory, the volume scattering theory model of single-layer optical film is established. The effects on volume scattering caused by layer thickness, polarization state of incident light, columnar structure factor and inhomogeneity are analyzed. For optical films with pure columnar structure, the variation law between the volume angle resolved scattering (ARS) of single-layer hafnium oxide (HfO₂) thin films prepared by electron beam evaporation and the layer thickness is established. The ARS magnitude of volume scattering for pure columnar HfO₂ films is similar to that of the completely uncorrelated surface scattering model. Within a certain range of film thickness, the ARS value of volume scattering increases with the increase of film thickness. For inhomogeneous thin films, the ARS value of volume scattering increases with the increase of film thickness when the inhomogeneity is constant. When the layer thickness is constant, the ARS value of volume scattering will decrease the increase of the absolute value of the inhomogeneity.

Key words thin films; volume scattering; first order perturbation theory; columnar structure factor; inhomogeneity

OCIS codes 310.6860; 290.5825; 290.5855

收稿日期: 2015-09-07; 收到修改稿日期: 2015-11-04

基金项目: 国家自然科学基金(U1430130, 61235011)、中央高校基本科研业务费专项资金

作者简介: 吴 晗(1991—), 女, 博士研究生, 主要从事光学薄膜散射方面的研究。E-mail: 7wutong@tongji.edu.cn

导师简介: 张锦龙(1982—), 男, 博士, 副教授, 主要从事光学薄膜方面的研究。E-mail: jinlong@tongji.edu.cn(通信联系人)

1 引 言

光学薄膜的散射现象已经引起了广泛的研究,主要原因是散射引起的损耗会影响光学薄膜的性能,其次是通过光散射研究可以非接触、非破坏性地分析薄膜的微结构信息^[1]。薄膜散射可分为体散射和表面散射。表面散射主要来自薄膜界面的微观粗糙结构,而体散射主要起源于薄膜内部折射率的非均匀性^[2]。一般来说,高质量光学薄膜的体散射值相对于表面散射值较小,因此光散射研究主要考虑表面散射^[3]。目前表面散射的理论模型已经很完善,理论计算值与实验结果也符合得较好^[4]。

而对薄膜体散射的研究,理论和实验方面都有很多不足之处。蒸发薄膜具有柱状结构,其孔隙和柱体的折射率差异很大,体散射现象较明显。1984年,Elson^[5]采用一阶电磁微扰理论分别计算单界面的体散射和表面散射,并通过互相关系数将二者结合起来。1992年,德国的Kassam等^[6]在Elson的基础上推导计算了单层膜的体散射,通过计算得到的散射值分析薄膜的微结构信息。1996年,法国的Maure等^[7]也基于一阶电磁微扰理论,用散射光偏振率的方法分离低水平散射的表面散射和体散射。这个方法对于角分布散射值(ARS)值大于 10^{-5} 的情形是有效的,但是用在更低水平的散射时,结果出现了异常,这时应考虑局部缺陷对散射结果的影响。2008年,Arnaud等^[8]应用严格的电磁理论,通过散射场的椭圆偏振测量技术,区分出任意散射水平的表面散射和体散射。

二氧化铪(HfO₂)是激光系统光学器件中最常用的高折射率薄膜材料之一,具有紫外(UV)到红外(IR)波段较宽的透明区域(0.22~12 μm),同时还有很好的热稳定性、化学稳定性、较好的光学与机械性能和较高的激光损伤阈值^[9]。电子束蒸发的单层HfO₂薄膜,柱状结构明显,薄膜内部折射率非均质性较大,可能产生较大的散射^[10-11]。本文在Elson、Kassam等人的研究基础上,将一阶电磁微扰理论应用到柱状结构显著的单层HfO₂薄膜的体散射理论模型中,具体分析了膜层厚度、非均质性、柱状结构因子以及入射光偏振态对体散射的影响。

2 单层光学薄膜体散射理论

如图1所示,在介质3基板上采用电子束蒸发的方法镀上膜层厚度为 d 的介质1薄膜,最上方介质2为空气,以膜层与空气的界面为 z 轴零点,沿基底竖直向上的方向为 z 轴正方向。介质1的介电常数表达式为

$$\varepsilon(\boldsymbol{\rho}, z) = \varepsilon_1 + \Delta\varepsilon(\boldsymbol{\rho}, z) \quad (1)$$

式中 ε_1 是介质1的平均介电常数,为定值。 $\Delta\varepsilon(\boldsymbol{\rho}, z)$ 是围绕定值 ε_1 随着三维坐标随机波动的值,满足 $\langle \Delta\varepsilon(\boldsymbol{\rho}, z) \rangle = 0$ 。令

$$\Delta\varepsilon(\boldsymbol{\rho}, z) = \Delta\varepsilon(\boldsymbol{\rho})\exp(\alpha z), -d \leq z \leq 0, \quad (2)$$

式中 $\Delta\varepsilon(\boldsymbol{\rho})$ 为 $\Delta\varepsilon(\boldsymbol{\rho}, z)$ 在 x - y 平面内的随机波动, $\boldsymbol{\rho}$ 为 x - y 平面内的位置矢量,令 $\langle |\Delta\varepsilon(\boldsymbol{\rho})|^2 \rangle = \zeta^2$, ζ 表示水平方向介电常数波动的均方根值。 α 为柱状结构因子,表示介电常数沿 z 轴方向的变化,当 $\alpha=0$ 时表示膜层为纯柱状结构^[6]。图2为三种不同的薄膜柱状结构模型,图2(a)为纯柱状结构模型;图2(b)为正锥体模型,呈负非均质性变化;图2(c)为负锥体模型^[2],呈正非均质性变化。

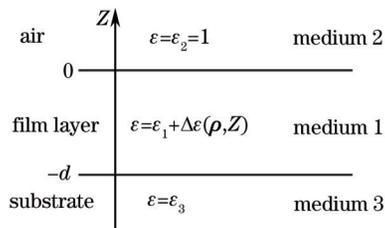


图1 单层光学薄膜的截面图^[6]

Fig.1 Cross section diagram of the single-layer optical thin film^[6]

若只考虑入射面上的体散射分布情况,并令 $\Phi=0$ (Φ 为散射光的方位角),基于一阶电磁微扰理论,当 $\zeta/|\varepsilon_1| \ll 1$ 时,ARS可定义为^[6]

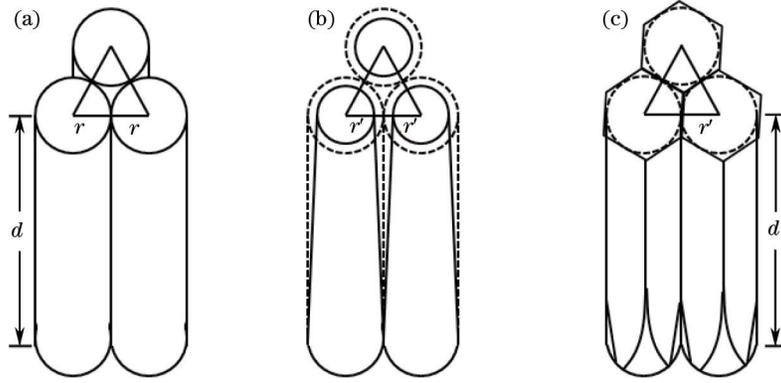


图2 三种不同的薄膜柱状结构模型^[2]

Fig.2 Three different thin film columnar structure models^[2]

$$f_{\text{ARS}} = \frac{1}{P_0} \left\langle \frac{dP}{d\Omega} \right\rangle = \frac{(\omega/c)^4 \cos^2 \theta}{(2\pi)^2 \cos \theta_0} (|\gamma_p|^2 + |\gamma_s|^2) g(\mathbf{k} - \mathbf{k}_0), \quad (3)$$

式中 $\left\langle \frac{dP}{d\Omega} \right\rangle$ 表示散射方向 (θ, Φ) 上单位立体角 $d\Omega = \sin\theta d\theta d\Phi$ 内的平均微分散射功率, 其中 θ 和 Φ 分别表示散射光的极化角和方位角。 γ_p, γ_s 的具体表达式可参考文献[6], $g(\mathbf{k} - \mathbf{k}_0)$ 表示水平方向上非均匀介电常数的功率谱密度函数, \mathbf{k}, \mathbf{k}_0 分别为散射光和入射光的波矢量, 其中 $k = 2\pi \sin\theta/\lambda, k_0 = 2\pi \sin\theta_0/\lambda, \theta_0$ 为入射光极化角, λ 为真空中光的波长。功率谱密度函数为介电常数波动的自协方差函数 $G(\tau) = \langle \Delta\varepsilon(\boldsymbol{\rho} + \boldsymbol{\tau})\Delta\varepsilon(\boldsymbol{\rho}) \rangle$ 的傅里叶变换, τ 为滞后长度。若入射光垂直入射, 则有 $g(\mathbf{k} - \mathbf{k}_0) = g(\mathbf{k})$, 可定义为

$$g(\mathbf{k}) = \frac{1}{L^2} \int d^2\rho d^2\tau \langle \Delta\varepsilon(\boldsymbol{\rho} + \boldsymbol{\tau})\Delta\varepsilon(\boldsymbol{\rho}) \rangle \exp(i\mathbf{k} \cdot \boldsymbol{\tau}) = \int d^2\tau G(\tau) \exp(i\mathbf{k} \cdot \boldsymbol{\tau}). \quad (4)$$

假设 $G(\tau) = \zeta^2 \exp[-(\tau/\tau_c)^2]$, τ_c 为薄膜不同柱状结构的平均直径^[6]。由(4)式可知

$$g(\mathbf{k}) = \pi\tau_c^2 \zeta^2 \exp\left[-\left(\frac{x \sin\theta}{2}\right)^2\right], \quad (5)$$

式中 $x = (\omega/c)\tau_c$ 。所以(3)式可改写为

$$f_{\text{ARS}} = \frac{1}{P_0} \left\langle \frac{dP}{d\Omega} \right\rangle = \frac{4\pi^3 \cos^2 \theta \tau_c^2 \zeta^2 \exp\left[-\left(\frac{x \sin\theta}{2}\right)^2\right]}{\lambda^4 \cos \theta_0} (|\gamma_p|^2 + |\gamma_s|^2). \quad (6)$$

3 单层 HfO₂ 薄膜体散射的数值计算

对于单层 HfO₂ 薄膜, 以折射率为 1.52 的 K9 为基板, 膜层上方的介质 2 是折射率为 1 的空气。HfO₂ 薄膜的厚度为 d , 令 $m = 2\sqrt{\varepsilon_1}d/\lambda$ 取整数, 在以下计算中用简化参数 m 值来表示膜层的厚度。因为 $\zeta^2 = (\varepsilon_{\text{void}} - \varepsilon_1)^2 p(1-p)$, 其中 $\varepsilon_{\text{void}}$ 表示柱状结构间空隙的介电常数, p 为薄膜的聚集密度, 若单层 HfO₂ 薄膜的平均介电常数 $\varepsilon_1 = 4.0, \varepsilon_{\text{void}} = 1.77$, HfO₂ 薄膜的聚集密度 $p = 0.95$, 可得出 $\zeta = 0.49$ ^[2,6,9]。

研究纯柱状结构下、垂直入射时不同的膜层厚度对体散射的影响, 假设薄膜的平均柱状结构直径 $\tau_c = 60 \text{ nm}$ ^[6]。如图 3 所示, TE、TM 分别表示入射光的偏振态, 在特定的膜厚变化范围内, 体散射的 ARS 值随着膜层厚度的增加而增大, 并且入射波的偏振态对体散射分布形状影响很小。

图 3 中的参数 ζ 较大, 计算得到 ARS 值的最大量级能达到 10^{-3} 。图 4 为单层 HfO₂ 薄膜的完全相关、完全非相关模型的表面散射情况, 其中薄膜厚度 $m = 1$, 基板 K9 的粗糙度为 1 nm, 入射光垂直入射。对比图 3、4 可知, $m = 1$ 时体散射值与表面散射的完全非相关模型的值接近, 所以对于电子束蒸发的单层 HfO₂ 薄膜, 必须考虑体散射。

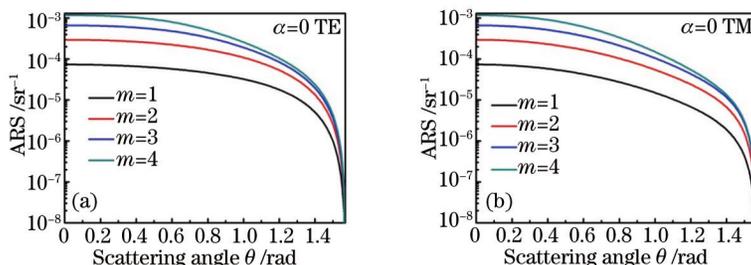


图3 不同膜层厚度,不同入射光下纯柱状结构体散射的ARS值。(a) TE波;(b) TM波

Fig.3 ARS values of volume scattering in pure columnar structure with different film thicknesses and different incident lights. (a) TE polarization; (b) TM polarization

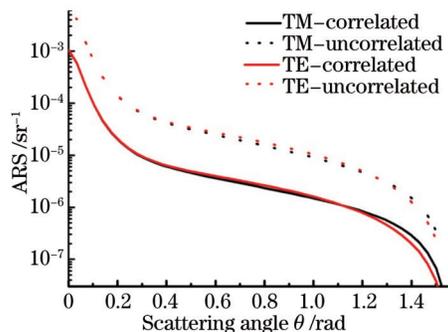


图4 单层HfO₂薄膜表面散射的ARS值(m=1)

Fig.4 ARS values of surface scattering for single-layer HfO₂ thin film (m=1)

对于电子束蒸发的单层HfO₂薄膜,当沉积温度不够高、氧分压较大时,沉积分子不易结晶,HfO₂薄膜通常呈正非均质性。当HfO₂薄膜结晶时,晶粒越大,则HfO₂薄膜的负非均质性就越大。当单层HfO₂薄膜的非均质性 $\left| \frac{\Delta n}{n} \right| \ll 1$ 时^[12],有

$$2 \frac{\Delta n}{n} \approx \frac{\varepsilon(\rho, z) - \varepsilon_1}{\varepsilon_1} = \frac{\Delta \varepsilon(\rho, z)}{\varepsilon_1} \quad (7)$$

当 $\zeta = -\Delta \varepsilon = 0.49$, $\varepsilon_1 = 4$ 时, $\frac{\Delta n}{n} = -0.06125 \exp(\alpha z)$; 当 $\zeta = \Delta \varepsilon = 0.49$, $\varepsilon_1 = 4$ 时, $\frac{\Delta n}{n} = 0.06125 \exp(\alpha z)$, 令 $A = \alpha z$ 为有效的柱状结构参数,非均质性随着柱状结构参数A的大致变化如图5所示。

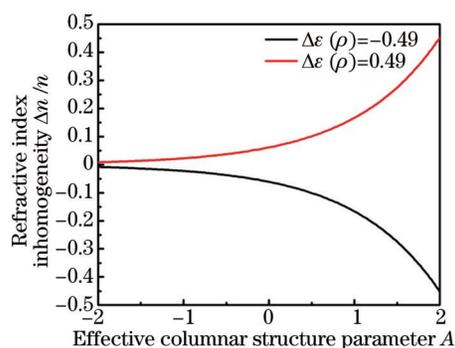


图5 单层HfO₂薄膜的非均质性

Fig.5 Inhomogeneity of single-layer HfO₂ thin film

研究 $\frac{\Delta n}{n} = -2.25\%$ 、平均柱状结构直径 $\tau_c = 60$ nm、垂直入射时不同的膜层厚度对体散射的影响,图6所示为入射光为TE、TM波时的ARS情况。对比图3、6可知,对于相同的膜层厚度和偏振态,纯柱状结构薄膜对应的体散射值较小。

由图6可知,当非均质性一定,单层HfO₂薄膜体散射的ARS值在一定的膜厚范围内随着膜层厚度的增大而增大,入射光的偏振态对体散射值影响也很小。

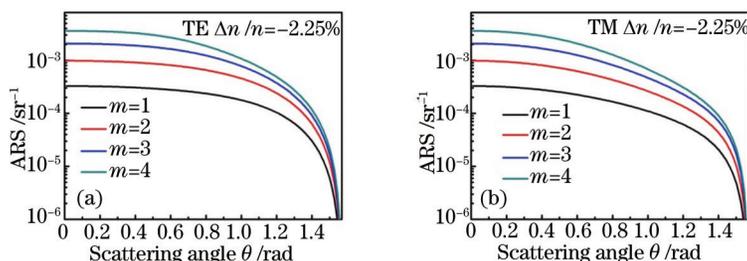


图 6 不同入射光下,不同膜层厚度对应的体散射的 ARS 值。(a) TE 波;(b) TM 波
Fig.6 ARS values of volume scattering for different film thicknesses and different incident lights.

(a) TE polarization; (b) TM polarization

以下为膜层厚度确定,但非均质性发生变化的情况。令 $m=1$, 平均柱状结构直径 $\tau_c=60$ nm, $\zeta=0.49$, 垂直入射。首先讨论 $\frac{\Delta n}{n}=-2.25\%$ 、 -3.72% 、 -4.1% 、 -5% 等非均质性为负值时的变化情况,如图 7 所示。从图中可知,TE、TM 入射波的 ARS 值随着 $\frac{\Delta n}{n}$ 绝对值的增大而减小。而当非均质性为正值时,如图 8 所示,体散射的 ARS 值也随着 $\frac{\Delta n}{n}$ 值的增大而减小。

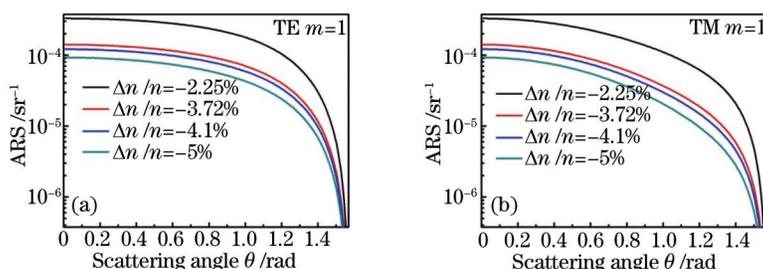


图 7 不同入射光下负非均质性对应的体散射的 ARS 值。(a) TE 波;(b) TM 波

Fig.7 ARS values of volume scattering at negative inhomogeneity for different incident lights. (a) TE polarization; (b) TM polarization

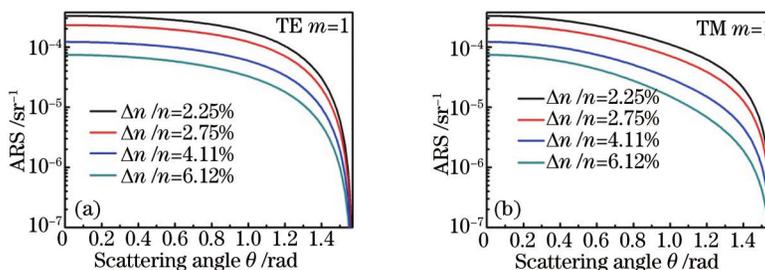


图 8 不同入射光下正非均质性对应的体散射的 ARS 值。(a) TE 波;(b) TM 波

Fig.8 ARS values of volume scattering at positive inhomogeneity for different incident lights. (a) TE polarization; (b) TM polarization

该现象可以用有效柱状结构参数 A 与 ARS 的关系解释,当散射角较小时^[6],近似得出

$$\frac{1}{P_0} \left\langle \frac{dP}{d\Omega} \right\rangle_{\theta \rightarrow 0} \approx \frac{\pi}{4\epsilon_1^3} x^2 \zeta^2 m^2 \left\{ \left[1 - \exp(-A) \right] \frac{4}{A \left(4 + \frac{A^2}{m^2 \pi^2} \right)} \right\}^2. \quad (8)$$

当 $\frac{\Delta n}{n} = \pm 0.06125 \exp(\alpha z)$ 时,有

$$\frac{1}{P_0} \left\langle \frac{dP}{d\Omega} \right\rangle_{\theta \rightarrow 0} \approx \frac{\pi}{4\epsilon_1^3} x^2 \zeta^2 m^2 \left[\left(1 - \frac{0.6125}{\left| \frac{\Delta n}{n} \right|} \right) \frac{4}{4 \ln \left| \frac{\Delta n}{n} \right| + 1.96 + \frac{\left(\ln \left| \frac{\Delta n}{n} \right| + 0.49 \right)^3}{m^2 \pi^2}} \right]^2. \quad (9)$$

根据(9)式可知,在散射角度较小、膜层厚度特定时,随着 $\left|\frac{\Delta n}{n}\right|$ 的增大,ARS值有逐渐减小的趋势,如图9所示,其中 $m=1$, $\tau_c=60$ nm, $\zeta=0.49$,纵坐标轴取以10为底的对数形式。

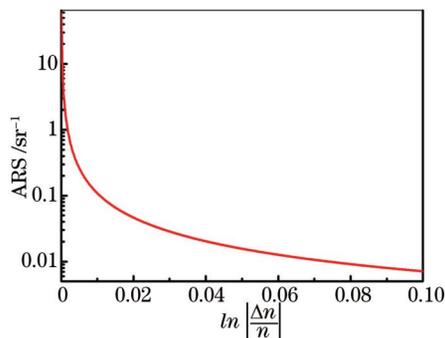


图9 体散射的ARS值与非均质性绝对值的关系

Fig.9 Relationship between absolute value of inhomogeneity and the ARS value of volume scattering

4 结 论

基于一阶电磁微扰理论,推导出单层柱状结构薄膜体散射的理论模型。计算了纯柱状结构下单层 HfO_2 薄膜的体散射,在特定的膜层厚度范围内,ARS值随着膜层厚度的增大而增大,其体散射的ARS值与完全非相关模型的表面散射值相近。对于非均质性单层 HfO_2 薄膜,在特定膜厚范围内,ARS值随着膜层厚度的增大而增大;膜层厚度一定时,体散射的ARS值随着非均质性绝对值的增大而减小。

参 考 文 献

- 1 Duparré A, Kassam S. Relation between light scattering and the microstructure of optical thin films[J]. Applied Optics, 1993, 32(28): 5475-5480.
- 2 Tang Jinfa, Gu Peifu, Liu Xu, *et al.*. Modern Optical Thin Film Technology[M]. Hangzhou: Zhejiang University Press, 2006: 385-388.
唐晋发, 顾培夫, 刘旭, 等. 现代光学薄膜技术[M]. 杭州: 浙江大学出版社, 2006: 385-388.
- 3 Amra C, Grezes-Besset C, Maure S, *et al.*. Light scattering from localized and random interface or bulk irregularities in multilayer optics: the inverse problem[C]. SPIE, 1994, 2253: 1184-1200.
- 4 Elson J M. Theory and Software for Light Scattering from Multilayer Optical Components with Interfacial Roughness[R]. Naval Air Warfare Center, Weapons Division, China Lake, CA, Technical Publication 8084, 1992.
- 5 Elson J M. Theory of light scattering from a rough surface with an inhomogeneous dielectric permittivity[J]. Physical Review B, 1984, 30(10): 5460-5480.
- 6 Kassam S, Duparré A, Hehl K, *et al.*. Light scattering from the volume of optical thin films: theory and experiment[J]. Applied Optics, 1992, 31(9): 1304-1313.
- 7 Maure S, Albrand G, Amra C. Low-level scattering and localized defects[J]. Applied Optics, 1996, 35(28): 5573-5582.
- 8 Arnaud L, Georges G, Deumié C, *et al.*. Discrimination of surface and bulk scattering of arbitrary level based on angle-resolved ellipsometry: theoretical analysis[J]. Optics Communications, 2008, 281(6): 1739-1744.
- 9 Yang Lihong, Wang Tao, Su Junhong, *et al.*. Influence of laser condition on the damage properties of HfO_2 thin film[J]. Acta Optica Sinica, 2013, 33(12): 1231001.
杨利红, 王涛, 苏俊红, 等. 激光预处理对 HfO_2 薄膜损伤特性的影响[J]. 光学学报, 2013, 33(12): 1231001.
- 10 Thielsch R, Gatto A, Heber J, *et al.*. A comparative study of the UV optical and structural properties of SiO_2 , Al_2O_3 , and HfO_2 single layers deposited by reactive evaporation, ion-assisted deposition and plasma ion-assisted deposition[J]. Thin Solid Films, 2002, 410(1-2): 86-93.
- 11 He Junpeng, Zhang Yueguang, Shen Weidong, *et al.*. Optical properties of Al_2O_3 thin film fabricated by atomic layer deposition[J]. Acta Optica Sinica, 2010, 30(1): 277-282.
何俊鹏, 章岳光, 沈伟东, 等. 原子层沉积制备 Al_2O_3 薄膜的光学性能研究[J]. 光学学报, 2010, 30(1): 277-282.
- 12 Amra C, Grèzes-Besset C, Bruel L. Comparison of surface and bulk scattering in optical multilayers[J]. Applied Optics, 1993, 32(28): 5492-5503.