

非均匀性对单层膜光学特性的影响

沈自才^{1,2} 宋永香¹ 王英剑¹ 范正修¹ 邵建达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 探讨了不同规律的非均匀性对单层膜的光谱特性的影响, 与均匀单层膜对比发现: 折射率正变引起透射率的极大值减小, 折射率负变引起透射率的极大值变大, 当非均匀性很小时, 透射率的极小值基本不变. 对实验制备的单层膜从实验和理论上进行了对比并给出了较好的拟合, 发现在薄膜和基底的界面处存在一过渡层, 过渡层可近似为线性, 并从理论上给予了分析解释.

关键词 非均匀性; 拟合; 光谱特性

中图分类号 O484 **文献标识码** A

0 引言

在设计和镀制光学薄膜时, 通常是以均匀薄膜理论为基础. 然而在镀制光学薄膜, 尤其是以物理气相沉积法镀制光学薄膜时, 由于技术条件和设备的限制, 沉积参数(主要为基底温度、压强和沉积速率)的波动会对光学薄膜带来或多或少的非均匀性^[1]. 非均匀性将给薄膜的光学性能带来很大的影响, 甚至会破坏薄膜的设计性能. 为此, 研究非均匀性可能对光学均匀薄膜性能的影响是非常必要的, 一方面可以了解非均匀性对光学薄膜影响的变化规律, 另一方面可以对镀制均匀膜时产生非均匀性的原因给以理论上的解释.

物理气相沉积法(如磁控溅射^[2~4])制备光学薄膜时, 通常沉积温度比较低, 沉积速度比较快, 过冷度比较高和原子扩散能力比较低, 同时温度较低使得吸附在薄膜上的杂质气体分子比较多, 从而而更容易得到非晶态结构. 沉积温度变大、压强变小或沉积速率变快, 则薄膜的致密性增大、折射率增大^[5,6], 反之则致密性减弱, 折射率变小, 三者相互影响, 相互关联. 在理论方面, Jacobsson^[7,8] 和 Tikhonravov^[9], Epstein 等^[10,11] 也进行了相关的研究.

本文首先对不同非均匀性单层膜的光学特性进行了模拟探讨, 以折射率 $n=1.92$ 为膜料折射率、550 nm 为参考波长、1.52 作为基底的折射率、214.8 nm 为单层膜几何厚度, 膜层的入射介质为空气, 基底为玻璃, 出射介质也为玻璃, 即 Air/films/glass; 实验制备了单层薄膜, 将理论光谱特性和实验光谱特性进行对比分析, 并对实验制备过程中出现的非均匀现象给出了较好的拟合, 最后对非均匀性产生的原因给出了理论解释.

1 非均匀性对单层均匀膜光学性能的影响

1.1 非均匀性对单层膜的光学性能的影响

薄膜在沉积过程中, 若沉积温度升高、沉积速率加快或者压强减小, 则会带来沉积的薄膜致密性增加, 折射率变大; 反之, 若沉积温度降低、沉积速率减慢或者压强增大, 则会带来沉积的薄膜致密性减小, 折射率变小. 对薄膜的折射率逐渐变大的情况, 称之为折射率正变; 折射率逐渐变小的情况, 称之为折射率负变.

通常折射率逐渐变化规律有线性变化、正余弦变化、指数变化和双曲变化. 折射率线性正变及其对薄膜的光学性能的影响, 分别见图 1、表 1, 折射率负变及其对薄膜的光学性能的影响, 分别见图 2、表 2.

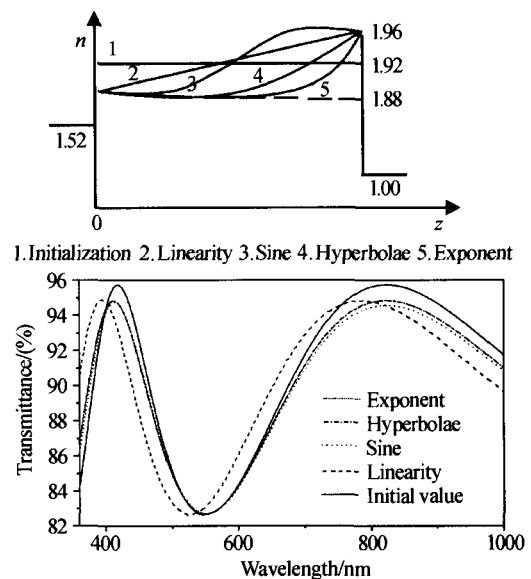


图 1 折射率正变单层膜的透射光谱
Fig. 1 Schematic diagram of influence of positive change on dielectric single layers

表 1 可见光范围的正变极值点列表

非均匀性	理论均匀膜	线性递增	正余弦递增	双曲递增	指数递增
极大值一	95.7416	94.8758	94.7381	94.8352	94.8385
极小值	82.6714	82.6743	82.6992	82.6970	82.6969
极大值二	95.7420	94.8143	94.5692	94.8396	94.8399

(极大值一为 400 nm 附近的极大值,极大值二为 820 nm 附近的极大值)

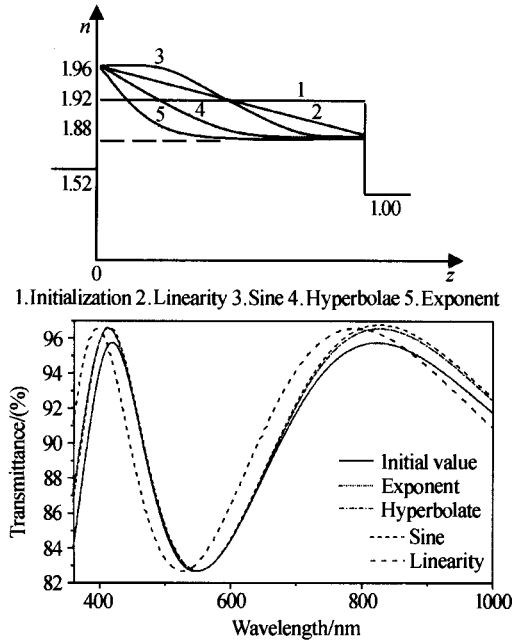


图 2 折射率负变薄膜的透射光谱

Fig. 2 Schematic diagram of influence of negative change on dielectric single layers

表 2 可见光范围的负变极值点列表

非均匀性	理论均匀膜	线性递增	正余弦递增	双曲递增	指数递增
极大值一	95.7416	96.5352	96.648	96.5657	96.5657
极小值	82.6714	82.6727	82.6992	82.6974	82.6974
极大值二	95.7420	96.5878	96.7851	96.5669	96.5668

(极大值一为 400 nm 附近的极大值,极大值二为 820 nm 附近的极大值)

由图 1、图 2 和表 1、表 2 分析可知,折射率正变的非均匀膜与均匀膜相比透射率极大值减小,极小值增大,折射率负变的非均匀膜与均匀膜相比透射率极大值变大,极小值也增大;但是当非均匀性很小,即折射率变化范围很小时,极小值点变化较小,基本不变,双曲递增和指数递增基本相似;在四种变化规律的非均匀膜中,与均匀薄膜相比较,正余弦变化受非均匀性的影响最大。

以上讨论的是在整个膜层中折射率渐变,而实际制备中也可能存在只是某一部分存在非均匀性,即部分非均匀性。在薄膜沉积初期,由于基底表面特性以及沉积参数的波动,薄膜的折射率将产生较大的波动,随着沉积的进行逐渐稳定下来,从而可能存在部分非均匀性。假设在单层膜的沉积初期,

薄膜的折射率从基底逐渐过渡到均匀膜的折射率,即变化范围为 1.52~1.92,以下分别是折射率线性递增、正余弦递增、指数递增和双曲递增对薄膜的光学性能的影响,分别见图 3、表 3。

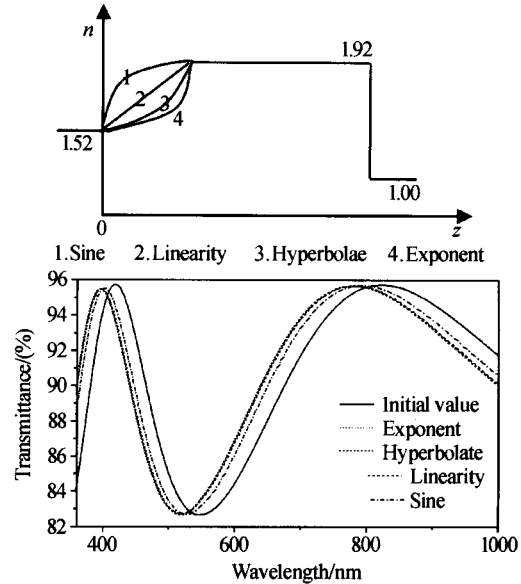


图 3 部分非均匀单层膜的透射光谱曲线

Fig. 3 Schematic diagram of influence of five change on single layer coatings

表 3 可见光范围内部分非均匀性极值点列表

非均匀性	理论均匀膜	线性递增	正余弦递增	双曲递增	指数递增
极大值一	95.7416	95.4677	95.5144	95.4785	95.4747
极小值	82.6714	82.7128	82.6937	82.6965	82.7048
极大值二	95.7420	95.6865	95.7056	95.6859	95.6858

(极大值一为 400 nm 附近的极大值,极大值二为 820 nm 附近的极大值)

由透射光谱曲线图和可见光范围内的极值点数据分析可知,在基底与薄膜界面处存在非均匀性的膜与均匀膜相比透射率极大值变小,极小值变大,在四种变化规律的非均匀膜中,与均匀薄膜相比较,正余弦变化受非均匀性的影响最大。

1.2 理论解释

对单层薄膜,当薄膜的折射率大于基片的折射率时,透射率的极小值对应于此处薄膜的光学厚度满足的奇数倍,此时,透射率大小为: $T = 1 - \left(\frac{n_0 n_2 - n_1^2}{n_0 n_2 + n_1^2} \right)^2$,式中 n_0, n_1, n_2 分别为入射介质(一般为空气,此时为 1)、薄膜和基底的折射率。当薄膜产生非均匀性后,其平均折射率为: $\bar{n} = \frac{1}{l} \int_0^l n(x) dx$,非均匀性很小时,平均折射率基本不变,即 $\bar{n} \approx n_1$,此时 T 基本不变,当 \bar{n} 减小时,透射率增大。

由于薄膜的折射率大于基片的折射率,此时均匀膜的透射率极大值处对应于基底的透射率,由于基底的折射率为 1.52,此时的理论透射率为

95.742. 模拟可以发现,均匀膜的极大值和理论值相同. 当折射率为正变时,透射率减小,此时非均匀性引起反射率的增加;当折射率为负变时,透射率增大,此时起到增透的作用. 因此可以利用非均匀性来增大或者减小薄膜的透射率,获得理想的薄膜特性.

2 实验与拟合分析

2.1 实验制备

在电子束蒸发真空镀膜机上镀制了 3H(四分之一波长厚度的薄膜)的 ZrO_2 ($n=1.92$) 薄膜,实验镀制条件见表 4.

表 4 薄膜的镀制实验条件

Vacuum /Pa	Reference wavelength /nm	Index temp /°C	The power of E-beam gun/mA	Charge ges	Gas quantum /Pa
2.4×10^{-2} (ZrO_2)	570	200	90(ZrO_2)	O_2	2.4×10^{-2}

用 Lambda900 分光光度仪对实验镀制的 ZrO_2 薄膜和基底的透射率进行了检测,测试结果如图 4; 实验数据见表 5.

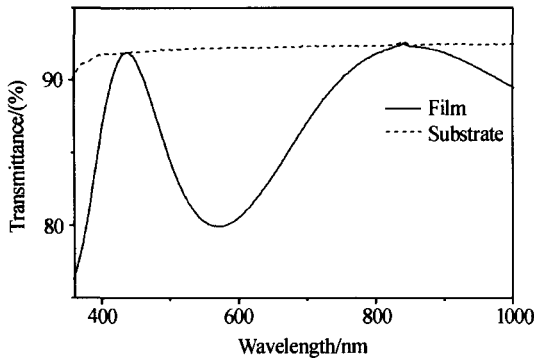


图 4 基底与 ZrO_2 薄膜的实验透射光谱图

Fig. 4 Transmittance of the substrate and ZrO_2 coatings

表 5 ZrO_2 薄膜和基底的极值点透射率

ZrO_2 薄膜理论值	极值点/nm	432	570	852
(570 nm 参考)	透射极值/(%)	92.072	79.513	92.621
ZrO_2 薄膜实测值	极值点/nm	436	570	840
(570 nm 参考)	透射极值/(%)	91.920	79.879	92.514
ZrO_2 薄膜拟合值	极值点/nm	434	568	842
(570 nm 参考)	透射极值/(%)	91.869	79.843	92.535

2.2 拟合与理论分析

对实验和测试结果进行了分析,基底的透射率在短波处有明显的下降,主要是存在吸收和色散的缘故. 考虑到基底的色散和吸收,用实验拟合得到的基底折射率数值对所镀制薄膜进行模拟,取参考波长为实验波长 570 nm,得到理论光谱图见图 5,三个极值点数据见表 5.

由实验测得可见光范围内极值点数据和和理论透射极值点数据对比分析,可以知道极大值点的透射率减小,极小值点透射率增大. 通过前面的模拟可

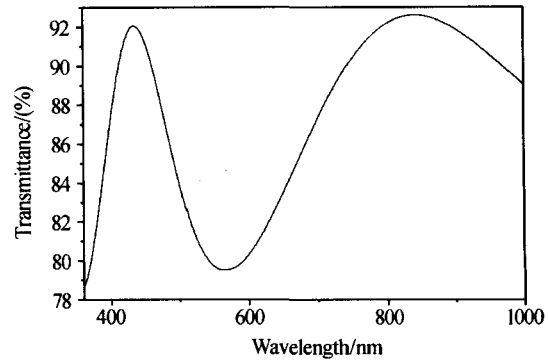


图 5 薄膜的理论透射光谱图

Fig. 5 Transmittance of the coatings in theory

以知道存在正变,由于薄膜蒸镀为电子束熔蒸,在沉积初期,观察到真空室内沉积参数变化波动较大,随着沉积的进行各项沉积参数趋于稳定,同时由于基底的表面特性的影响,可以分析在薄膜沉积初期存在较大的非均匀性,沉积一段时间后薄膜可近似看为均匀膜. 对实验数据进行拟合,得到拟合薄膜的折射率分布图见图 6,拟合光谱图见图 7,拟合数据见表 5,由数据对比分析,拟合较好.

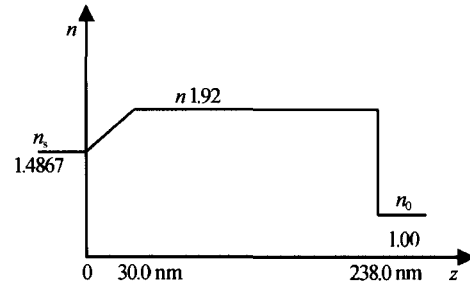


图 6 ZrO_2 薄膜的折射率分布拟和图

Fig. 6 The diagram of refractive of the ZrO_2 coatings

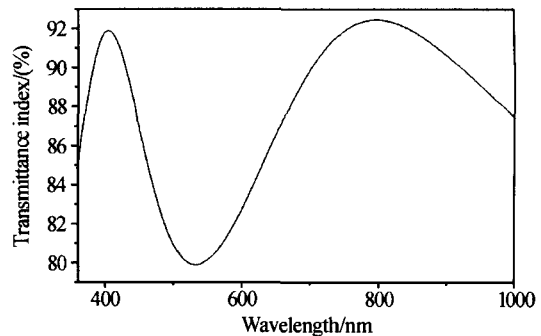


图 7 ZrO_2 薄膜的拟合透射光谱图

Fig. 7 Fitting transmittance of the ZrO_2 coatings

由拟合得到的折射率分布规律图谱可以看出,折射率在靠近基底附近有个过渡层. 由分析可以知道,在刚开始镀制时,膜料的预熔和蒸发参数不稳定,且蒸发膜料受基底的温度影响比较大,随着薄膜的镀制进行,沉积参数逐渐稳定,镀制的薄膜受基底的影响变小趋于稳定;此外,基底的表面特性(如基底表面的粗糙度、表面吸附的杂质气体)对薄膜的沉积亦有较大的影响,因此可以认为在薄膜和基底的

接触界面处存在线性过渡层,过渡层的折射率变化介于薄膜折射率和基底折射率之间。

3 结论

由折射率渐变透射光谱曲线图和均匀膜透射光谱曲线以及可见光范围内极值点数据分析可知,折射率正变透射光谱极大值减小,负变极大值增大,极小值均增大;但是当非均匀性很小,即折射率变化范围很小时,极小值点变化较小,基本不变,双曲递增和指数递增基本相似。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,近似为线性变化,折射率大小介于薄膜和基底的折射率之间。

参考文献

- Harris M, Macleod H A, Ogura E P, *et al.* The relationship between optical inhomogeneity and film structure. *Thin Solid Films*, 1979, **57**(1): 173~178
- 刘金城, 鲁建业, 田雪松, 等. 磁控溅射法制备二氧化钒薄膜最佳参数的研究. *光子学报*, 2003, **32**(1): 65~67
Liu J C, Lu J Y, Tian X S, *et al.* *Acta Photonica Sinica*, 2003, **32**(1): 65~67
- 刘波, 阮昊, 干福熹. 相变光盘介电薄膜 ZnS-SiO₂ 的微观结构和光学特性(英文). *光子学报*, 2003, **32**(2): 834~836
Liu B, Ruan H, Gan F X. *Acta Photonica Sinica*, 2003, **32**(2): 834~836
- 孔伟金, 吴福全, 郝殿中, 等. 窄带薄膜偏光分束镜的研制. *光子学报*, 2004, **33**(11): 1373~1376
Kong W J, Wu F Q, Hao D Z, *et al.* *Acta Photonica Sinica*, 2004, **33**(11): 1373~1376
- 吴自勤, 吴兵. 薄膜生长. 北京: 科学出版社, 2001. 170~213
Wu Z Q, Wu B. *The Growth of Thin Film Coatings*. Beijing: Science Press, 2001. 170~213
- 唐伟忠. 薄膜材料制备原理、技术及应用. 北京: 冶金出版社, 1998. 112~123
Tang W Z. *Preparation, Technology and Application of Thin Film Coatings*. Beijing: The Metallurgic Press, 1998. 112~123
- Jacobsson R. Light reflection from films of continuously varying refractive index, in *Progress in Optics*, E. Wolf, ed. Amsterdam: North-Holland, 1965, (5)Sec. 2
- Jacobsson R. Inhomogeneous and co-evaporated homogeneous films for optical applications, in *Physics of Thin Films*, G. Hass, M. H. Francombe, and R. W. Hoffman, eds. New York: Academic, 1975, 8: 51~98
- Tikhonravov A V, Trubetskov M K, Brian T, *et al.* Influence of small inhomogeneities on the spectral characteristics of single thin films. *Appl Optics*, 1997, **36**(28): 7188~7198
- Epstein P S. Reflection of waves in an inhomogeneous absorbing medium. *Proc Natl Acad Sci*, 1930, **16**(10): 627~637
- Monaco S F. Reflectance of an inhomogeneous thin film. *J Opt Soc Am*, 1961, **51**(3): 280~282

Influence of Inhomogeneities on the Optic Characteristics of Single Coatings

Shen Zicai^{1,2}, Song Yongxiang¹, Wang Yingjian¹, Fan Zhengxiu¹, Shao Jianda¹

¹ Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201800

² Graduate School of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100039

Received date: 2004-10-13

Abstract Influence of different inhomogeneities on the spectral characteristics of dielectric single layers was discussed. Comparing with homogeneous coatings, it is found: the maximum of the film with positive change decreased, and with negative change increased; the minimum of the film changed little when the inhomogeneity was small comparing with homogeneity film. Through the comparison of the film in theoretic and experimental, there are transitional layers between substrate and coatings, and the refractive index lies between them.

Keywords Inhomogeneity; Simulate; Spectral characteristics



Shen Zicai was born in 1980 in Shandong. He graduated from Materials Department of Shandong Institute of Light Industries and Obtained the Bachelor's Degree in 2002. Now he is working for his Master's Degree in Shanghai Institute of Optics and Mechanics. His research interests include polarized light technology and gradient refractive films or inhomogeneity coatings.