

# 单层 $\text{TiO}_2/\text{SiO}_2$ 光学薄膜减散射理论与实验探究

刘金泽, 潘永强, 杨琛

(西安工业大学 光电工程学院, 西安 710021)

**摘要:** **目的** 降低单层光学薄膜的散射损耗。**方法** 通过相干散射理论研究, 给出了单层光学薄膜减散射的理论依据。利用电子束热蒸发技术在 K9 玻璃上分别镀制了单层光学厚度为  $\lambda/2$  的  $\text{TiO}_2$  和  $\lambda/4$  的  $\text{SiO}_2$  薄膜, 并通过改变工艺对薄膜的表面粗糙度进行了调控, 利用 horos 散射仪分别测量了镀膜前后光学元件表面的双向反射分布函数。**结果** 对于光学厚度为  $\lambda/2$  的单层  $\text{TiO}_2$  薄膜, 当薄膜上下界面粗糙度比值为 0.7 时, 减散射效果明显优于比值为 0.6 和 0.9, 且比值越接近 0.71, 减散射效果越明显。对于光学厚度为  $\lambda/4$  的单层  $\text{SiO}_2$  薄膜, 当薄膜上下界面粗糙度比值为 0.7 时, 减散射效果明显优于比值为 0.8 和 1.4, 且比值越接近 0.13, 减散射效果越明显。**结论** 单层光学薄膜减散射条件不仅与光学薄膜的界面粗糙度有关, 而且与薄膜光学厚度和膜料折射率也有着密切的关系。对于特定光学厚度的单层  $\text{TiO}_2$  和  $\text{SiO}_2$  薄膜, 当薄膜上下界面的粗糙度比值满足减散射区间时, 都可以实现减散射的效果, 且比值越接近最佳减散射比值, 减散射的效果越好。此外, 在一定条件下, 薄膜表面粗糙度大于基底表面粗糙度时, 也有可能实现减散射的效果。

**关键词:** 光学薄膜; 双向反射分布函数; 减散射; 表面粗糙度; 光学厚度; 折射率

**中图分类号:** O484 **文献标识码:** A **文章编号:** 1001-3660(2019)08-0172-05

**DOI:** 10.16490/j.cnki.issn.1001-3660.2019.08.023

## Theoretical and Experimental Study on Scattering Reduction of Single-layer $\text{TiO}_2/\text{SiO}_2$ Optical Films

LIU Jin-ze, PAN Yong-qiang, YANG Chen

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

**ABSTRACT:** The work aims to reduce the scattering loss of single-layer optical films. The theoretical basis of the scattering reduction of single-layer optical films was proposed according to the theory of coherent scattering. A single layer of  $\text{TiO}_2$  with optical thickness  $\lambda/2$  and  $\text{SiO}_2$  with optical thickness  $\lambda/4$  were respectively deposited on K9 glass by electron beam thermal evaporation technique. The surface roughness of the film was adjusted by changing the process, and the horos scattering instrument was used to measure the bidirectional reflection distribution function on the surface of the optical element before and after coating. For the single-layer  $\text{TiO}_2$  film with optical thickness  $\lambda/2$ , when the ratio of the upper and lower interface roughness of the film was 0.7, the scattering reduction effect was obviously better than that with the ratio of 0.6 and 0.9, and the closer the ratio was to 0.71, the more obvious the scattering reduction effect was. For the single-layer  $\text{SiO}_2$  film with optical thickness  $\lambda/4$ ,

收稿日期: 2018-11-06; 修订日期: 2019-05-23

**Received:** 2018-11-06; **Revised:** 2019-05-23

**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)

**Fund:** Supported by Basic Research Project of Natural Science of Shaanxi Province (2018JM6031), Shaanxi Provincial Department of Education Key Laboratory Research Projects (18JS054)

**作者简介:** 刘金泽 (1994—), 男, 硕士研究生, 主要研究方向为薄膜工艺与薄膜检测技术

**Biography:** LIU Jin-ze (1994—), Male, Master, Research focus: thin film process and thin film inspection technology

**通讯作者:** 潘永强 (1974—), 男, 博士, 教授, 主要研究方向为薄膜工艺与薄膜检测技术。邮箱: pyq\_867@163.com

**Corresponding author:** PAN Yong-qiang (1974—), Male, Doctor, Professor, Research focus: thin film process and thin film inspection technology. E-mail: pyq\_867@163.com

when the ratio of the upper and lower interface roughness of the film was 0.7, the scattering reduction effect was obviously better than that with the ratio of 0.8 and 1.4, and the closer the ratio was to 0.13, and the more obvious the scattering reduction effect was. The scattering resistance of the single-layer optical film is not only related to the interface roughness of the optical film, but also closely related to the optical thickness of the film and the refractive index of the film. For single-layer  $\text{TiO}_2$  and  $\text{SiO}_2$  films with specific optical thicknesses, when the roughness ratio of the upper and lower interfaces of the film satisfies the subtraction scattering interval, the effect of subtraction scattering can be achieved, and the closer the ratio is to the optimal subtraction ratio, the better the effect of subtract scattering is. Under certain conditions, when the surface roughness of the film is greater than the surface roughness of the substrate, it is also possible to achieve the effect of reducing the scattering.

**KEY WORDS:** optical thin film; bidirectional reflection distribution function; anti-scattering; surface roughness; optical thickness; refractive index

薄膜散射损耗的高低是评价光学薄膜质量的重要依据之一,尤其是应用在一些高精密、高质量的光学仪器中,对薄膜散射损耗的要求更显得尤为重要。在相干光学系统中,基底和薄膜表面粗糙度引起的表面散射损耗,会使光学系统中的传输能量下降,严重影响成像质量<sup>[1]</sup>。对于光学薄膜散射的研究,是为了能够获得影响薄膜散射的主要因素,并通过调控这些因素,最终制备出低散射的光学薄膜,使其能够应用在一些高精密的光学系统上。此外,还可以依据光学薄膜表面散射特性,提供一种表面形貌的检测方法<sup>[2]</sup>。光学薄膜的散射损耗大体上可分为两方面:体散射和表面散射。研究发现,光学薄膜的表面散射量要远大于光学薄膜的体散射量<sup>[3]</sup>,因此要研究光学薄膜的减散射特性,主要应从薄膜表面的微粗糙度入手。一直以来,国外对于光学薄膜表面散射的理论和实验都有着大量而深入的研究,如德国夫琅和费应用光学与精密工程研究所的 S. Schroder 等人<sup>[4-6]</sup>在基于矢量散射的基础上,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,设计了新的实验方法和建模技术来研究不同粗糙面的散射特性。此外,该研究所还开发了多种能够在多光谱范围内进行角分辨散射测量和反射测量的仪器。国内在这方面也有一定的研究,如侯海虹、潘永强等人<sup>[7-8]</sup>分析了  $\text{ZrO}_2$  薄膜在实际沉积过程中,其表面粗糙度的变化规律,认为薄膜沉积的初期会对基底固有粗糙度有一定的填补作用,并依据等效介质理论,提出以均匀薄层来代替表面粗糙度,建立光学薄膜的分层界面散射模型。与其他模型相比,分层界面散射模型更能准确地表征薄膜表面的散射特性<sup>[9]</sup>,但对于光线入射的方向有着严格的要求。以上研究结果表明,薄膜表面散射与薄膜各界面粗糙度和基底粗糙度有着密切关系。近几年,西安工业大学的潘永强教授<sup>[10]</sup>就致力于单层薄膜的减散射研究,根据薄膜粗糙表面的一阶微扰理论,从理论上推导了单层薄膜减散射条件,这为后续的多层薄膜减散射研究打下基础。

本文在单层光学薄膜相干散射理论的基础上,推导了单层光学薄膜不同光学厚度的减散射条件,从理

论和实验上共同探究了单层光学薄膜减散射条件与薄膜光学厚度、材料折射率以及薄膜表面粗糙度之间的关系。在具有一定微粗糙度的玻璃基底上,分别镀制光学厚度为  $\lambda/2$  的单层  $\text{TiO}_2$  薄膜和光学厚度为  $\lambda/4$  的单层  $\text{SiO}_2$  薄膜,通过改变电子束束流大小,对薄膜表面粗糙度进行调控,使其到达理论上的期望值,并采用 horos 散射仪,测量薄膜镀制前后基底、薄膜表面的角分辨散射值,分别对比了单层  $\text{TiO}_2$  薄膜上下界面粗糙度比值为 0.6、0.7、0.9 的三组实验以及单层  $\text{SiO}_2$  薄膜上下界面粗糙度比值为 0.7、0.8、1.4 的三组实验。本文不仅从理论上分析了单层光学薄膜的减散射条件,而且也从实验上验证了其理论的可靠性。在课题组前期研究的基础上,对单层薄膜减散射特性做了更深入的研究,同时也为国内光学薄膜减散射的研究做了铺垫。

## 1 单层光学薄膜减散射理论

在具有一定表面粗糙度的玻璃基底上镀制一层光学薄膜,如图 1 所示,空气介质的折射率为  $n_0$ ,玻璃基底的折射率为  $n_s$ ,薄膜的折射率为  $n$ 。空气和薄膜的接触面为界面 0,其粗糙度为  $\sigma_0$ ;薄膜和基底的接触面为界面 1,粗糙度为  $\sigma_1$ 。由于光入射时,在两个界面上均会发生光的散射,从而引起散射损耗,为了减少这种散射损耗,可以通过这两个界面微粗糙度所引起光散射的相干散射理论,分析得出单层光学薄膜的减散射条件,进一步通过调控薄膜表面的微粗糙度,来降低单层光学薄膜的散射损耗。

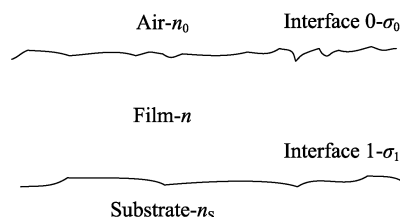


图 1 单层光学薄膜示意图

Fig.1 Schematic diagram of single layer optical film

本文在课题组前期对相干散射理论研究的基础上<sup>[11]</sup>,得出了单层光学薄膜的减散射条件,概括如下:

理论上,当单层光学薄膜的光学厚度为 $\lambda/4$ 偶数倍时,薄膜上下界面粗糙度比值满足式(1)所示范围时,即可实现减散射的效果。

$$(\sigma_0/\sigma_1) \in \left[ \frac{(n^2 + n_0^2 - 2n_s^2)}{(n^2 - n_0^2)}, 1 \right] \quad (1)$$

仅考虑该区间的正值部分,并结合实际情况,将 $n_0=1$ 和 $n_s>1$ 代入式(1),分析得出:实验中,当膜层的光学厚度为 $\lambda/4$ 偶数倍时,只要满足两个条件(膜层的折射率大于基底的折射率( $n>n_s$ )且膜层的上下界面粗糙度比值满足(1)式),就可以实现减散射的效果。同时,此区间也必然存在一个实现零散射的比值,如式(2)所示:

$$\sigma_0/\sigma_1 = (n^2 - n_s^2)/(n^2 - n_0^2) \quad (2)$$

当单层光学薄膜的光学厚度为 $\lambda/4$ 的奇数倍时,同样可以得出该两个界面粗糙度比值的具体范围,即式(3):

$$(\sigma_0/\sigma_1) \in \left[ \left( \frac{n}{n_s} \right)^2 \frac{n_s^2 - n^2 + (1/A)}{n^2 - n_0^2}, \left( \frac{n}{n_s} \right)^2 \frac{n_s^2 - n^2 - (1/A)}{n^2 - n_0^2} \right] \quad (3)$$

其中:

$$A = -n^2(n_0 + n_s) / [(n_s - n_0)(n_0 n_s + n^2)^2] < 0 \quad (4)$$

根据以上分析,同理可得:在单层光学薄膜的光学厚度为 $\lambda/4$ 奇数倍时,当基底折射率大于膜层折射率( $n < n_s$ )且单层光学薄膜上下界面粗糙度比值满足(3)式时,就可以实现减散射的效果。同时,此区间也必然存在一个实现零散射的比值,即式(5):

$$\sigma_0/\sigma_1 = (n/n_s)^2 (n_s^2 - n^2)/(n^2 - n_0^2) \quad (5)$$

## 2 单层光学薄膜减散射实验探究

根据单层薄膜的减散射理论分析,结合课题组之前的实验研究发现<sup>[11]</sup>,在具有一定微粗糙度的玻璃基底上,镀制不同光学厚度的单层薄膜,通过改变电子束束流大小来调控薄膜表面粗糙度,使其达到理论期望值,并利用 horos 散射仪测量对比裸基底和薄膜表面的双向反射分布函数,从理论和实验相结合的角度去探究单层薄膜的减散射特性。

本实验选用表面粗糙度为 2 nm、折射率为 1.52 的 K9 玻璃作为基底,折射率为 2.35 的  $\text{TiO}_2$  和折射率为 1.46 的  $\text{SiO}_2$  作为镀膜材料。将以上两种镀膜材料的折射率分别代入公式(1)、(3),可计算出其减散射区间;再将其代入公式(2)、(5),可得出其零散射值。理论上单层光学厚度为 $\lambda/2$ 的  $\text{TiO}_2$  薄膜上下界面粗糙度比值在区间[0.42, 1]内时,可实现减散射效果;比值为 0.71 时,可实现零散射。同样地,当单层光学厚度为 $\lambda/4$ 的  $\text{SiO}_2$  薄膜上下界面粗糙度比值在区间[0, 1.198]内时(仅考虑正值部分),可实现减散射效果;比值为 0.13 时,可实现零散射。

在 K9 玻璃上镀制光学厚度为 $\lambda/2$ 的  $\text{TiO}_2$  薄膜,镀膜前的本底真空度为  $7.2 \times 10^{-3}$  Pa,充氧后的工作真空度为  $2.2 \times 10^{-2}$  Pa,监控波长为 500 nm,烘烤温度为常温,通过改变电子束束流大小,获得表面微粗糙度分别为 1.2、1.4、1.8 nm 的单层光学薄膜,利用 horos 散射仪测量对比镀制前后的散射分布,如图 2 所示。

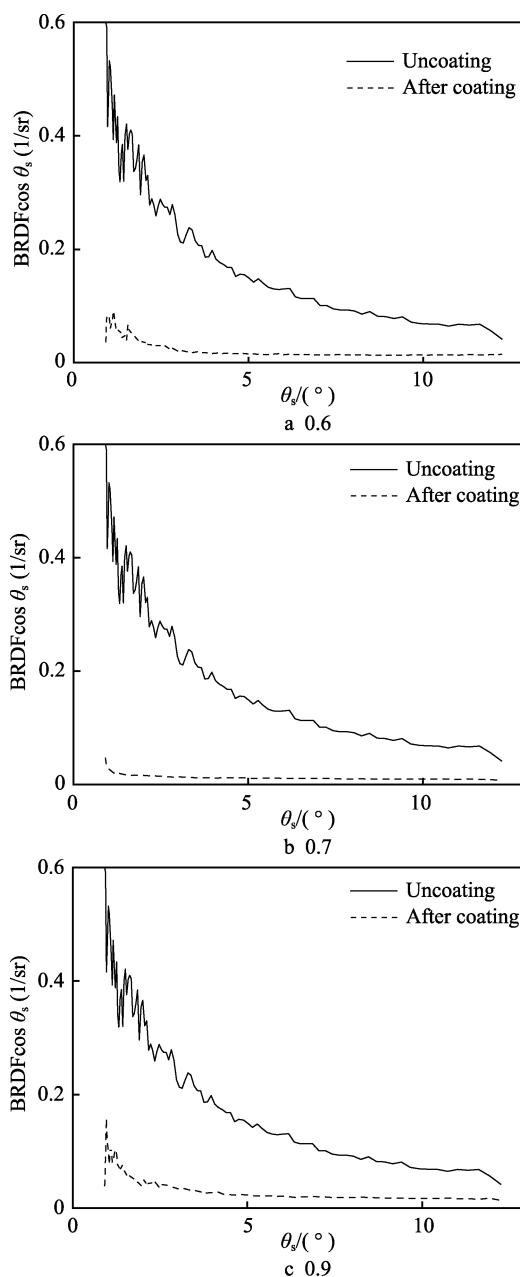


图2 镀制前及镀制后膜层与基底表面粗糙度比值不同的 BRDF 曲线(光学厚度 $\lambda/2$ )

Fig.2 BRDF curves with different roughness ratios of film to substrate before and after plating (optical thickness  $\lambda/2$ )

从图中可以看出,三组数据中,基底表面和镀膜之后的 BRDF 曲线都呈一定的下降趋势,并且基底表面的 BRDF 曲线都明显高于镀膜之后的曲线。这说明,当单层  $\text{TiO}_2$  薄膜的上下界面粗糙度比值取合适值时,会实现减散射的效果。为了进一步研究  $\text{TiO}_2$

薄膜的最佳减散射特性, 将三组数据绘制的 BRDF 曲线放在同一个坐标系下, 如图 3 所示。

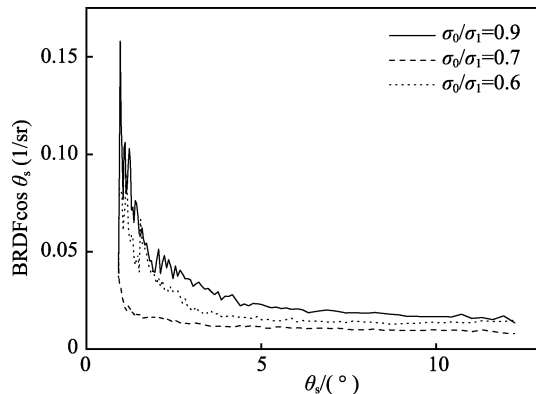


图 3 不同比值下  $\text{TiO}_2$  光学薄膜的 BRDF 曲线 (光学厚度  $\lambda/2$ )

Fig.3 BRDF curves of  $\text{TiO}_2$  optical film at different ratios (optical thickness  $\lambda/2$ )

由图 3 可以看出, 不同粗糙度比值所对应的 BRDF 曲线均不一样, 虽然有相似的减散射趋势, 但是具体的减散射效果却不尽相同。就本实验中的  $\text{TiO}_2$  光学薄膜而言, 当薄膜上下界面比值为 0.7 时, 能够实现最佳的减散射效果; 且不论此比值是大于还是小于 0.7, 都无法实现更好的减散射效果。结合之前的理论计算发现, 0.71 是实现最佳减散射 (即零散射) 的比值。实验结果与理论相吻合。

同样地, 在 K9 玻璃上镀制光学厚度为  $\lambda/4$  的  $\text{SiO}_2$  光学薄膜, 镀膜前的本底真空度为  $8.3 \times 10^{-3}$  Pa, 充氧后的工作真空度为  $1.5 \times 10^{-2}$  Pa, 监控波长为 500 nm, 烘烤温度为常温, 通过改变电子束束流大小, 获得表面微粗糙度分别为 1.4、1.6、2.8 nm 的单层光学薄膜, 利用 horos 散射仪测量对比镀膜前后的散射分布, 如图 4 所示。

从图 4 可以看出, 三组数据中, 基底表面和薄膜表面的 BRDF 曲线都呈一定的下降趋势, 并且基底表面的 BRDF 曲线都明显高于镀膜之后的曲线。这表明, 当单层  $\text{SiO}_2$  薄膜的上下界面粗糙度比值在减散射的范围内时, 都会实现减散射的效果。

根据之前的研究, 对于折射率小于基底折射率的  $\text{SiO}_2$  薄膜而言, 当薄膜表面的粗糙度大于基底表面粗糙度时, 也有可能实现减散射的现象, 如图 4c 所示。

为了进一步研究  $\text{SiO}_2$  薄膜的最佳减散射特性, 将三组数据绘制的 BRDF 曲线放在同一坐标下, 如图 5 所示。

由图 5 可以看出, 虽然三条曲线都可以实现减散射, 且 BRDF 曲线也具有相似的减散射趋势, 但是具体的减散射效果却不尽相同。就本实验的  $\text{SiO}_2$  薄膜而言, 相较于其他两组数据, 当薄膜界面粗糙度比值为 0.7 时, 能够实现较好的减散射效果。结合之前的理论计算发现, 实现  $\text{SiO}_2$  光学薄膜的最佳减散射的比值应在 0.13 左右。但考虑到实际的实验水平, 极难

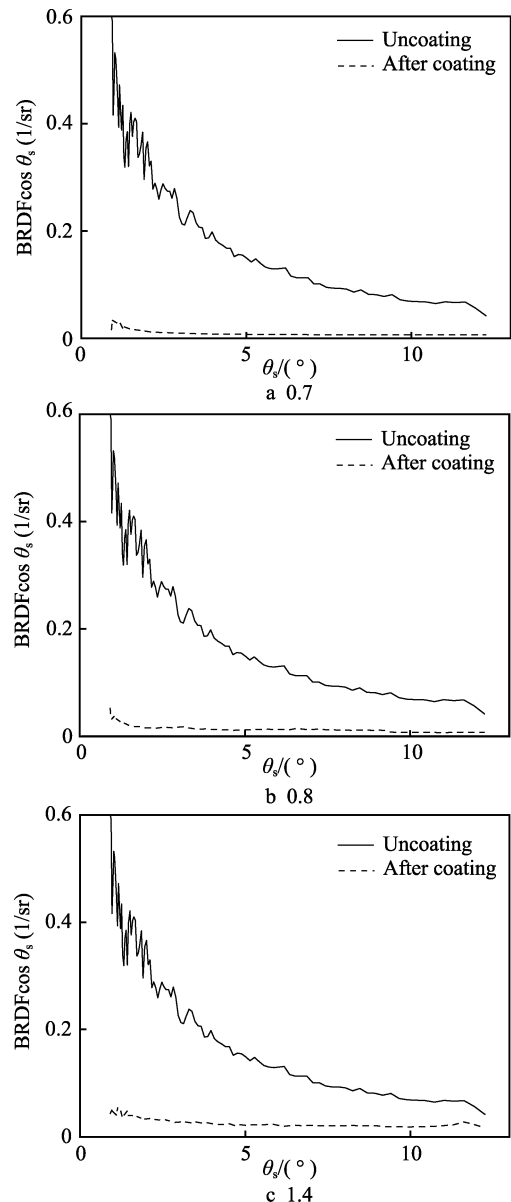


图 4 镀制前及镀制后膜层与基底表面粗糙度比值不同时的 BRDF 曲线 (光学厚度  $\lambda/4$ )

Fig.4 BRDF curves with different ratio of coating roughness to base surface roughness before and after plating (optical thickness  $\lambda/4$ )

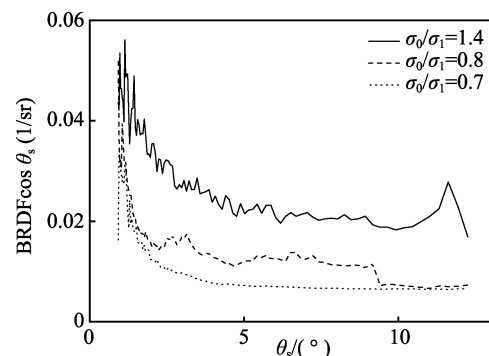


图 5 不同比值下  $\text{SiO}_2$  光学薄膜的 BRDF 曲线 (光学厚度  $\lambda/4$ )

Fig.5 BRDF curves of  $\text{SiO}_2$  optical films at different ratios (optical thickness  $\lambda/4$ )

获得粗糙度比值为 0.13(薄膜表面粗糙度为 0.26 nm)的 SiO<sub>2</sub> 薄膜。所以,对比实验中的三组数据,不难发现,当比值越接近 0.13 时,减散射的效果越好。

### 3 结论

本文依据单层光学薄膜矢量光散射理论,利用双向反射分布函数,从理论上分析了不同光学厚度、折射率的单层光学薄膜的减散射和零散射条件。通过调整薄膜制备参数,设计相关实验,验证了不同光学元件表面粗糙度对单层光学薄膜减散射特性的影响,得出以下结论:

1) 单层光学薄膜减散射条件与单层薄膜上下界面粗糙度比值、光学薄膜的光学厚度和光学薄膜的折射率这三者之间有着密切的关系。

2) 对于单层光学厚度为  $\lambda/2$  的 TiO<sub>2</sub> 薄膜,当薄膜上下界面的粗糙度比值在小于 1 的合适范围内(即此比值在满足减散射区间内时),才可以实现减散射的效果,且这个比值越接近零散射比值时,减散射效果越好。

3) 对于单层光学厚度为  $\lambda/4$  的 SiO<sub>2</sub> 薄膜,不仅当薄膜上界面的粗糙度小于下界面粗糙度时,可实现减散射的效果,而且在取大于下界面的粗糙度的合适值时,依然可以实现减散射的效果,且比值越趋近于理论上最佳减散射的比值时,减散射效果越好。

### 参考文献:

- [1] 卜轶坤, 赵丽, 郑权, 等. 高损伤阈值激光反射镜的设计方法[J]. 红外与激光工程, 2006, 35(2): 183-186.  
BU Yi-kun, ZHAO Li, ZHENG Quan, et al. Design method of high damage threshold laser mirror[J]. Infrared and laser engineering, 2006, 35(2): 183-186.
- [2] 钱佳立, 陆惠宗, 袁巨龙, 等. 基于光学原理的轴承球体表面缺陷检测方法研究[J]. 表面技术, 2018, 47(10): 309-314.  
QIAN Jia-li, LU Hui-zong, YUAN Ju-long, et al. Inspection of the surface defects of bearing ball based on optical theories[J]. Surface technology, 2018, 47(10): 309-314.
- [3] 赵云. 透明基片表面散射与体散射的研究[D]. 长沙: 国防科学技术大学, 2011.

ZHAO Yun. Study of surface and bulk scattering of transparent substrates[D]. Changsha: National University of Defense Technology, 2011.

- [4] SCHRÖDER S, ANGELA D, LUISA C, et al. Modeling of light scattering in different regimes of surface roughness[J]. Optics express, 2011, 19(10): 9820-9835.
- [5] 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.
- [6] SCHRÖDER S, TROST M, GARRICK M, et al. Origins of light scattering from thin film coatings[J]. Thin solid films, 2015, 592: 248-255.
- [7] 侯海虹, 孙喜莲, 申雁鸣, 等. 电子束蒸发氧化锆薄膜的粗糙度和光散射特性[J]. 物理学报, 2006(6): 3124-3127.  
HOU Hai-hong, SUN Xi-lian, SHEN Yan-ming, et al. Roughness and light scattering properties of ZrO<sub>2</sub> thin films deposited by electron beam evaporation[J]. Acta physica sinica, 2006(6): 3124-3127.
- [8] 潘永强, 吴振森, 杭凌侠, 等. 二氧化锆薄膜表面粗糙度的研究[J]. 应用光学, 2008, 29(4): 606-609.  
PAN Yong-qiang, WU Zhen-sen, HANG Ling-xia, et al. Study on surface roughness of ZrO<sub>2</sub> thin films[J]. Journal of applied optics, 2008, 29(4): 606-609.
- [9] 侯海虹, 沈健, 沈自才, 等. 光学薄膜的分层界面散射模型[J]. 光学学报, 2006, 26(7): 1102-1106.  
HOU Hai-hong, SHEN Jian, SHEN Zi-cai, et al. Stratified-interface scattering model for multilayer optical coatings [J]. Acta optica sinica, 2006, 26(7): 1102-1106.
- [10] 潘永强, 陈佳. 光学薄膜减散射特性研究[J]. 红外与激光工程, 2016, 45(1): 0118007.  
PAN Yong-qiang, CHEN Jia. Anti-scattering properties of optical thin film[J]. Infrared and laser engineering, 2016, 45(1): 0118007.
- [11] 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): 4-5.  
PAN Yong-qiang, YANG Chen. Study on surface roughness of titanium dioxide thin film[J]. Applied optics, 2018, 39(3): 4-5.