

德鲁德分布非均匀膜的光学特性模拟分析

沈自才^{1,2} 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 从德鲁德理论出发,对多元共蒸法镀制的非均匀膜的折射率分布与沉积速率的关系进行了探讨;然后利用计算机辅助模拟,对德鲁德分布非均匀光学薄膜,从单周期和多周期、正变和负变、完整周期和存在半周期几个方面对其光学特性进行了系统分析.研究发现:其透射率的极小值和周期数的关系遵从周期数的三次多项式衰减规律,不同规律的德鲁德分布非均匀膜可用来设计不同功能的滤光片.

关键词 光学薄膜;非均匀性;滤光片;优化

中图分类号 O484 **文献标识码** A

0 引言

渐变折射率薄膜,又称为非均匀膜,其特征是沿着膜层表面的法线方向折射率连续变化,而在垂直于法线的水平方向上折射率保持不变^[1].非均匀薄膜由于其特有的折射率连续变化特性可以用来满足现代薄膜光学中均匀薄膜所无法满足的光谱特性要求,因此越来越受到科研工作者的重视并得到了应用.

渐变折射率薄膜的研究起步虽然较早,但是与均匀薄膜相比较,研究的并不是很多.目前主要应用在减反射膜、太阳玻璃的吸收膜、啁啾介质激光镜和 rugate 滤光片^[2,3]等方面.

非均匀薄膜的制备方法可以分为三大类:一是多元共蒸法,即通过共同蒸镀两种或者几种膜料、不同膜料的蒸发速率的变化来实现折射率的渐变;二是反应沉积法,即通过逐渐改变反应沉积条件来实现折射率的渐变;三是沉积参数(如沉积温度,基底温度,气压)的变化来实现折射率的变化,但这仅仅带来折射率的微小改变.目前主要研究的是反应法和多元共蒸法.

多元共蒸法制备光学薄膜,关键是要精确控制不同膜料的蒸镀速率,从而实现不同介质混合膜的折射率渐变.本文利用经典的德鲁德理论,从折射率变化的机理开始,探讨了折射率与沉积速率的关系,并利用计算机辅助来研究不同膜料蒸镀速率呈线性变化时得到的不同规律非均匀薄膜的光学特性变化规律,为利用多元共蒸法镀制非均匀光学薄膜提供理论上的指导.

1 德鲁德分布非均匀膜理论分析

1.1 介电常数 ϵ 的确定

从宏观观点分析,电介质的特性可表示为

$$\mathbf{D} = \epsilon_0 \mathbf{E} + \mathbf{P} = \epsilon \epsilon_0 \mathbf{E} \quad (1)$$

可以得到

$$\mathbf{P} = (\epsilon - 1) \epsilon_0 \mathbf{E} \quad (2)$$

式中 \mathbf{D} 为电位移矢量, \mathbf{E} 为电场强度, \mathbf{P} 为每单位体积中的极化强度矢量,而 ϵ 为介电常数, ϵ_0 为真空介电常数,在国际单位制中 $\epsilon_0 = 8.85 \times 10^{-12}$ F/m.对于各向同性介质, ϵ 是一个标量.

在共蒸镀法制备的光学电介质膜中,假设电介质由相同的“基元”组成,密度为 N 分子/米³.如果在其上施加电场 \mathbf{E} ,则在分子中将产生电偶极矩为

$$\mathbf{P}' = \alpha \mathbf{E}' \quad (3)$$

则每单位体积内的总极化强度为

$$\mathbf{P} = N \mathbf{P}' = N \alpha \mathbf{E}' \quad (4)$$

对 k 种不同膜料蒸镀的混和介质膜,则其总极化强度可表示为

$$\mathbf{P} = \sum_{x=1}^k N_x \alpha_x \mathbf{E}'_x \quad (5)$$

式中 α 是分子极化率, \mathbf{E}'_x 是第 x 种分子所在位置的定域电场强度, \mathbf{E}' 为总定域电场强度.在德鲁德理论中,不考虑周围介质极化所引起的局部干扰,则有

$$\mathbf{E} = \mathbf{E}' \quad (6)$$

由式(2)、(5)、(6)可以得到

$$\epsilon - 1 = \sum_{x=1}^k \frac{N_x}{N} (\epsilon_x - 1) \quad (7)$$

假设混合物中第 x 种分子的浓度按物质的量计算,则有

$$c_x = N_x / N \quad (8)$$

式中 N_x 为单位体积中第 x 种分子的分子数密度, N 为混合物中单位体积的总分子数密度.

由式(7)、(8)可以得到介电常数

$$\epsilon = \frac{\sum_{x=1}^k \epsilon_x c_x}{\sum_{x=1}^k c_x} \quad (9)$$

1.2 介电常数 ϵ 、折射率 n 与沉积速率 v 的关系

对混合共蒸镀法镀制的非均匀薄膜,假设基片上第 x 种组分的实际沉积速率为 $v_x(t)$,沉积组分体积为各组分沉积的体积之和,则总沉积速率为各膜料的沉积速率之和;由于通常采用两种高、低折射率膜料来共蒸镀,通过改变一种膜料或者两种膜料的沉积速率即可实现混和介质膜的折射率在两种膜料的折射率之间变化.分别假设两种膜料单分子体积为 V_1, V_2 ,沉积后混合介质膜总体积为两种膜料沉积体积之和,则总沉积速率也为其沉积速率之和

$$v(x) = V_1(x) + V_2(x) \quad (10)$$

1.2.1 沉积速率已知时的折射率变化规律

1)若假设各种组分单分子体积大小相等,即 $V_1 = V_2$,则瞬态组分可表示为

$$c_x = v_x(t) / \sum_{x=1}^k v_x(t) \quad (11)$$

可以得到

$$\epsilon(t) = \frac{\sum_{x=1}^k \epsilon_x v_x(t)}{\sum_{x=1}^k v_x(t)} \quad (12)$$

对两组分膜料镀制混合介质膜,则有

$$\epsilon(t) = \frac{\epsilon_1 V_1(t) + \epsilon_2 V_2(t)}{V_1(t) + V_2(t)} \quad (13)$$

所以,可以得到

$$n(t) = \epsilon(t)^{1/2} = \left[\frac{\epsilon_1 V_1(t) + \epsilon_2 V_2(t)}{V_1(t) + V_2(t)} \right]^{1/2} \quad (14)$$

2)若 $V_1 \neq V_2$,则瞬态组分为

$$c_1(t) = \frac{V_1(t)V_2}{V_1(t)V_2 + V_2(t)v_1} \quad (15)$$

$$c_2(t) = \frac{V_2(t)V_1}{V_1(t)V_2 + V_2(t)v_1} \quad (16)$$

式由(9)、(15)、(16)可以得到混合介质膜的介电常数为

$$\epsilon(t) = \frac{\epsilon_1 V_1(t)V_2 + \epsilon_2 V_2(t)V_1}{V_1(t)V_2 + V_2(t)V_1} \quad (17)$$

混合介质膜的折射率分布为

$$n(t) = \epsilon(t)^{1/2} = \left[\frac{\epsilon_1 V_1(t)V_2 + \epsilon_2 V_2(t)V_1}{V_1(t)V_2 + V_2(t)V_1} \right]^{1/2} \quad (18)$$

只要知道了沉积膜料单分子所占体积的大小和沉积速率的变化关系,即可以推导出折射率随沉积速率的变化规律.

1.2.2 折射率已知时的沉积速率变化规律

1)若 $V_1 = V_2$,由 1.2.1 1)中的折射率公式(14),可以知道:

若总的沉积速率为一常数 v ,此时,两种膜料的沉积速率同时变化,即

$$n^2(t) = n_1^2 \frac{V_1(t)}{v} + n_2^2 \frac{v - V_1(t)}{v} \quad (19)$$

可以推导出两种膜料的沉积速率分别为

$$V_1(t) = \frac{n^2(t) - n_2^2}{n_1^2 - n_2^2} v \quad (20)$$

$$V_2(t) = v - V_1(t) = \frac{n_1^2 - n^2(t)}{n_1^2 - n_2^2} v \quad (21)$$

若其中一种膜料的沉积速率不变,假设 $V_2(t) = V_2$,可推导出另一种膜料的沉积速率为

$$V_1(t) = \frac{n^2(t) - n_2^2}{n_1^2 - n^2(t)} V_2 \quad (22)$$

总的沉积速率为

$$v(t) = \frac{n_1^2 - n_2^2}{n_1^2 - n^2(t)} V_2 \quad (23)$$

2)若 $V_1 \neq V_2$,由 1.2.1,2)中的折射率变化式(18),可以知道:

若总沉积速率为一常数 v ,则可得沉积速率分别为

$$V_1(t) = \frac{V_1 v [n^2(t) - n_2^2]}{[n_1^2 - n^2(t)]V_2 + [n^2(t) - n_2^2]V_1} \quad (24)$$

$$V_2(t) = \frac{V_2 v [n_1^2 - n^2(t)]}{[n_1^2 - n^2(t)]V_2 + [n^2(t) - n_2^2]V_1} \quad (25)$$

若其中一种膜料的沉积速率不变,假设 $V_2(t) = V_2$,可得到另一种膜料的沉积速率为

$$V_1(t) = \frac{V_1 [n_2^2 - n^2(t)]}{V_2 [n^2(t) - n_1^2]} V_2 \quad (26)$$

总的沉积速率为

$$v(t) = \frac{V_1 n_2^2 - V_2 n_1^2 + n^2(t)(V_2 - V_1)}{V_2 [n^2(t) - n_1^2]} V_2 \quad (27)$$

在多元共蒸法制备光学薄膜时,可以由所要得到的光谱性能推导出折射率的变化规律,因此再知道沉积膜料单分子所占体积的大小,就可以推导出理论沉积速率的变化规律.

1.2.3 德鲁德分布规律

假设沉积速率随时间呈线性变化,即

$$v_x(t) = \{v_x(T) - v_x(0)\}(t/T) + v_x(0) \quad (28)$$

式中 T 表示蒸镀厚度为 h 的膜所需要的总时间.可以证明此时介电常数的分布可用如下形式因数来表示

$$a = \frac{\sum_{x=1}^k v_x(0)}{\sum_{x=1}^k v_x(T)} \quad (29)$$

则薄膜的上下两表面处的介电常数为

$$\epsilon(0) = \frac{\sum_{x=1}^k \epsilon_x v_x(T)}{\sum_{x=1}^k v_x(T)} \quad (30)$$

$$\epsilon(h) = \frac{\sum_{x=1}^k \epsilon_x v_x(0)}{\sum_{x=1}^k v_x(0)} \quad (31)$$

假设 $v_1 = v_2$ 并代入 1.2.1 1)中运算可得到

$$\epsilon(z) = \frac{\epsilon(0) - a\epsilon(h)}{1 - a} - \frac{a[\epsilon(0) - \epsilon(h)]}{(1 - a)[1 + (a^2 - 1)z/h]^{1/2}} \quad (32)$$

当 $a = 1$ 时

$$\epsilon(z) = \epsilon(0) - [\epsilon(0) - \epsilon(h)]z/h \quad (33)$$

可以知道, $a=1$ 时的介电常数分布为其特殊形式, 此时各混合物总的沉积速率不变.

若取 $a = n^2(0)/n^2(h)$, 则折射率分布为

$$n(z) = \{1/n^4(0) - [1/n^4(0) - 1/n^4(h)]z/h\}^{1/4} \quad (34)$$

当 $a=1$ 时, 则有

$$n(z) = \{n^2(0) - [n^2(0) - n^2(h)]z/h\}^{1/2} \quad (35)$$

以上即为推导出的折射率德鲁德分布方程式.

2 德鲁德分布非均匀薄膜的光学特性分析与讨论

利用麦克斯韦方程, 借助于计算机编程辅助来研究不同规律的德鲁德分布非均匀薄膜的光学特性规律, 假设采用折射率分别为 1.46 和 1.92 的两种高低

膜料, 基底的折射率为 1.52, 膜的结构为: air/coatings/substrate. 通过分别改变两种膜料的蒸发速率得到折射率随厚度分布的混合介质膜. 膜料的沉积速率和折射率的分布规律遵循 1. 2. 3 中的式(28)、(34)分布. 若薄膜的折射率逐渐递增称其为折射率正变, 折射率递减称其为折射率负变. 下面分别研究不同规律的德鲁德分布非均匀膜的光学特性.

2.1 单周期德鲁德分布非均匀膜的光学特性

分别取德鲁德分布非均匀膜正变、负变两种类型, 其厚度分别为 $h, 3h, 5h, h=26 \text{ nm}$, 高、低膜料的折射率分别为 1.92 和 1.46. 其折射率变化曲线和透射光谱图分别见图 1; 折射率为 1.52 的基底的透射率为 95.742%.

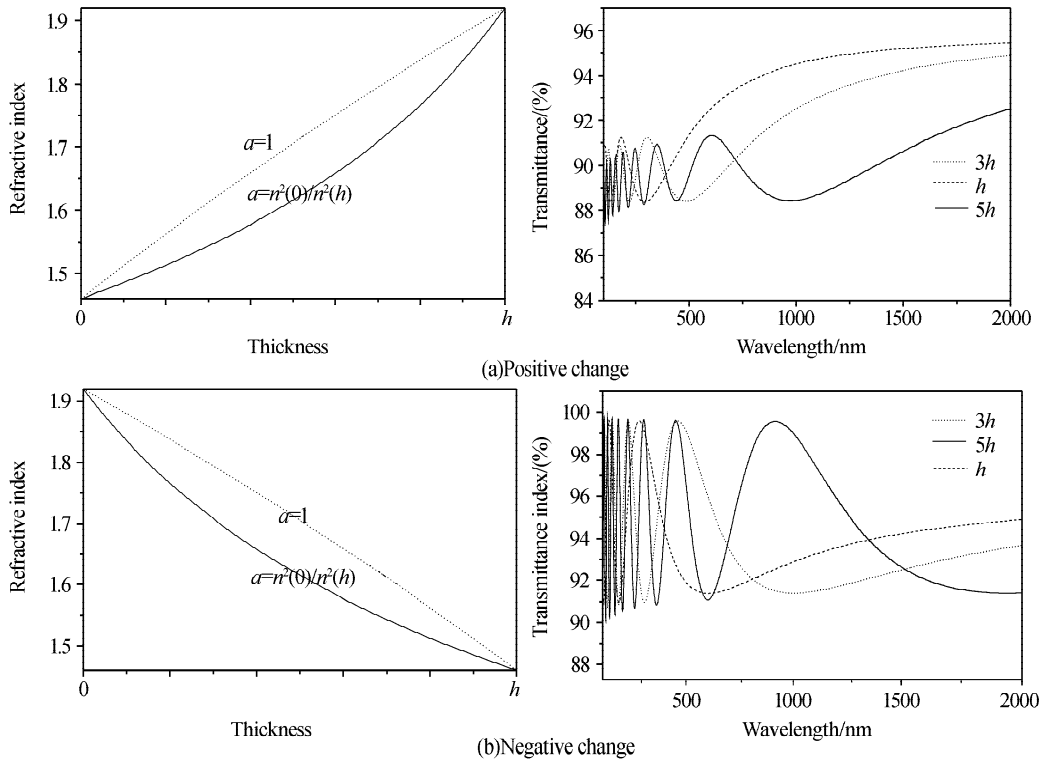


图 1 德鲁德分布单层膜透射光谱
Fig. 1 Schematic diagram of drude single dielectric coatings

由透射光谱图可以看出, 对于折射率正变的单周期德鲁德分布非均匀膜, 其透射率极大值和极小值均小于基底的透射率, 透射率的极值随着向短波方向的漂移而减小; 其极值点的波长位置随膜厚的增加而向长波方向漂移.

对于折射率负变的单周期德鲁德分布非均匀膜, 其透射率极大值大于基底的透射率, 其透射率的极小值均小于基底的透射率, 透射率的极大值随着向短波方向的漂移而增大, 透射率的极小值随着向短波方向的漂移而减小; 其极值点的波长位置随膜厚的增加而向长波方向漂移.

将折射率正变和折射率负变的单周期德鲁德分布非均匀膜相比较可以发现, 折射率正变的单周期德鲁德分布非均匀膜的极大值小于对应的折射率负变的单周期德鲁德分布非均匀膜的极大值, 其极小值也小于折射率负变的单周期德鲁德分布非均匀膜的极小值.

2.2 多周期德鲁德分布非均匀膜光学特性

2.2.1 正、负变德鲁德分布非均匀膜的光学特性

下面研究多周期情况下德鲁德分布非均匀膜的光学特性. 假设薄膜折射率从 1.46 变化到 1.92 的厚度为 h , 从 1.92 变化到 1.46 也为 h , 称连续变化

2h, 即从低折射率→高折射率→低折射率, 或者高折射率→低折射率→高折射率为一个周期. 假设周期性德鲁德分布非均匀薄膜变化中, 折射率首先从低折射率向高折射率变化称为正变, 折射率首先从高折射率向低折射率变化称为负变. 折射率正变和负变的周期示意图见图 2.

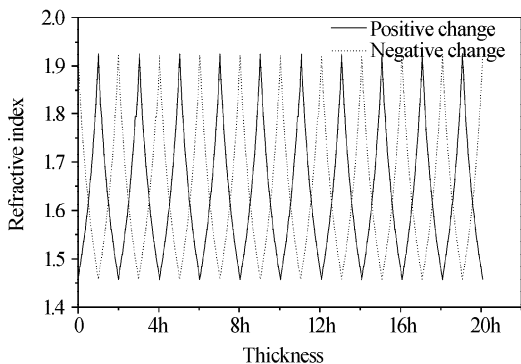


图 2 折射率周期变化

Fig. 2 Periodic changes of refractive index

1) 完整周期的德鲁德分布非均匀膜

对完整周期的德鲁德分布非均匀膜, 以 15 个周期为例, 其德鲁德分布正、负变非均匀膜的透射光谱示意图见图 3.

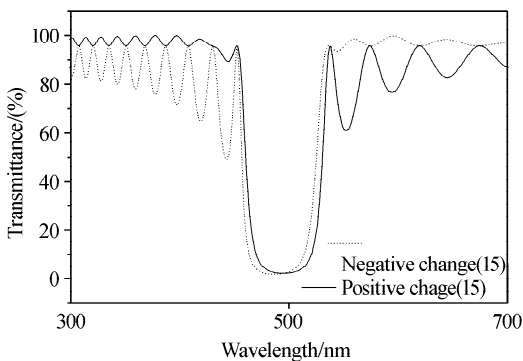


图 3 德鲁德分布非均匀膜透射光谱

Fig. 3 Transmittance of Drude inhomogeneous coatings

由图中分析可以看出, 正变和负变的周期性德鲁德分布非均匀膜在某一个波长附近透射率很小, 而在两侧透射率较大, 可以用作负滤光片; 正变的德鲁德分布非均匀薄膜其短波方向位置透射率波纹很小, 长波方向位置透射率波纹较大, 可用作短波通滤光片, 相应地, 正变的多周期德鲁德分布膜系与短波通基本膜系 $(0.5L H 0.5L)^n$ 类似; 负变的德鲁德分布非均匀薄膜其短波方向位置透射率波纹较大, 长波方向位置透射率波纹较小, 相对较平滑, 可用作长波通滤光片, 对应的负变多周期德鲁德膜系与长波通基本膜系 $(0.5H L 0.5H)^n$ 类似.

2) 存在半周期的德鲁德分布非均匀膜

存在半周期的德鲁德非均匀膜是指若干周期后又增加半个周期的德鲁德分布非均匀膜, 图 4 给出了存在半周期的多周期德鲁德分布正负变非均匀膜示意图. 由图中分析可以看出: 对存在半周期的德鲁德分布非均匀薄膜, 正变分布时在短波处透射率波纹较大, 长波处透射率波纹较小, 可用作长波通滤光片, 相应膜系类似于层状膜堆 $0.5L(HL)^n0.5H$; 负变分布时在短波处透射率波纹较大长波处透射率波纹小, 可用作短波通滤光片, 相应膜系类似于层状膜堆 $0.5H(LH)^n0.5L$.

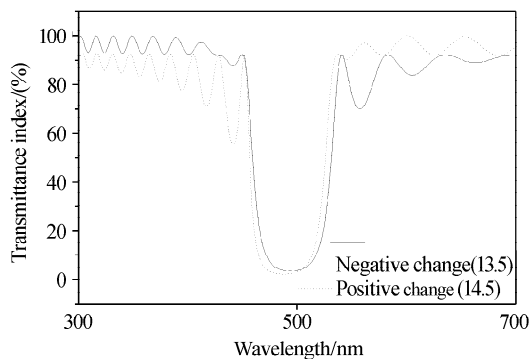


图 4 存在半周期的德鲁德分布非均匀膜透射

Fig. 4 Transmittance of Drude coatings with half periods

2.2.2 周期数对德鲁德分布非均匀膜的光学特性的影响

由 2.1 中分析可知, 同一个周期, 几何厚度或者光学厚度越大, 非均匀膜的透射特性对应的波长位置呈比例的增加, 因此, 可以通过改变单周期的几何厚度或光学厚度实现在不同波长位置的滤光特性.

对每个周期几何厚度相同的德鲁德分布非均匀薄膜来说, 周期数的多少直接影响负滤光片的透射光谱的大小, 下面以正变周期性德鲁德分布非均匀薄膜为例来说明. 图 5 是周期数分别为 9、11、13、15 的正变德鲁德分布非均匀膜的透射光谱图. 透射率极小值与周期数的对应关系见表 1.

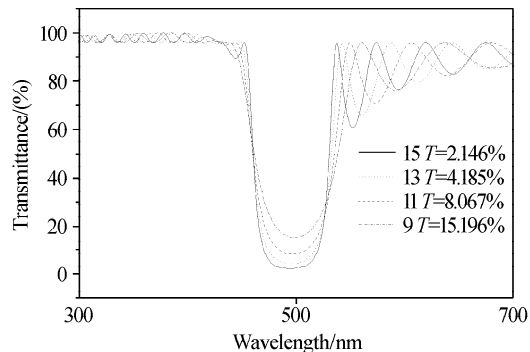


图 5 不同周期的正变德鲁德分布非均匀膜透射

Fig. 5 Transmittance of positive Drude coatings in different periods

表1 不同周期数的透射率极小值

周期数	2	3	4	5	6	7	8	9
透射率极小值(%)	80.392	69.389	57.597	46.207	36.031	27.464	20.566	15.195
周期数	10	11	12	13	14	15	16	17
透射率极小值(%)	11.112	8.067	5.822	4.185	2.999	2.146	1.532	1.092

由图5和表1可以看出,随着德鲁德分布非均匀膜的周期数的增加,透射率的极小值变小,极值点基本不变,通过对不同周期的极值点进行拟和,发现透射率极小值遵从周期数的三次多项式分布衰减.设周期数为 x ,衰减方程为

$$T(\%) = 115.32011 - 18.44611x + 0.97179x^2 - 0.01646x^3.$$

拟和图见图6.模拟发现,当周期数达到17时,透射率极小值可降到1%.

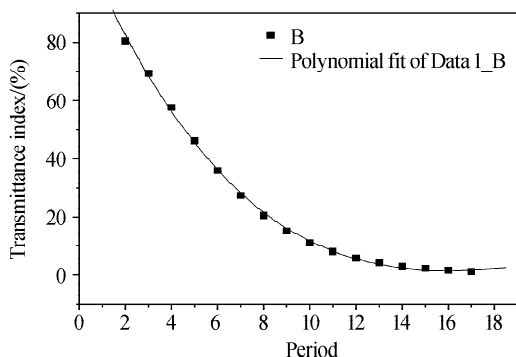


图6 透射率随周期变化的拟合曲线图

Fig. 6 Fitting curve of the transmittance and periods

3 讨论与结论

通过以上对德鲁德分布非均匀膜的光学特性的模拟分析,下面对其制备和应用等问题作进一步的讨论.

3.1 德鲁德非均匀膜的应用

前面主要模拟了 $a = n^2(0)/n^2(h)$ 时的情况,同理可以分析知道, $a = 1$ 时薄膜具有相似的光学特性.由模拟分析可知,正变的多周期德鲁德分布非均匀膜和存在半周期的负变的多周期德鲁德分布非均匀膜可以用作短波通滤光片;负变的多周期德鲁德分布非均匀膜和存在半周期的正变的多周期德鲁德分布非均匀膜可以用作长波通滤光片;通过增加周期数和调整单周期厚度可以制得理想的负滤光片.由于渐变折射率薄膜具有折射率连续变化的特性,消除了界面,有望用在强激光薄膜上,大大提高它们的抗激光损伤阈值.

3.2 德鲁德非均匀薄膜的制备

德鲁德非均匀膜的制备,可以采用高低折射率两种膜料,通过控制两种膜料的沉积速率变化,从而进一步改变两种膜料的沉积百分比,达到折射率连续变化的目的.双源线性共蒸法的优点是相对于多

源更容易控制且可实现折射率的逐渐变化;膜料的沉积速率可通过速率控制器来控制,目前主要是使用石英晶体振荡控制^[5],可以通过计算机来自动控制沉积速率,基本示意图见图7.对于此非均匀膜的实验制备正在进行中.此外,也可用磁控溅射法来实现膜料的蒸发沉积^[6,7].

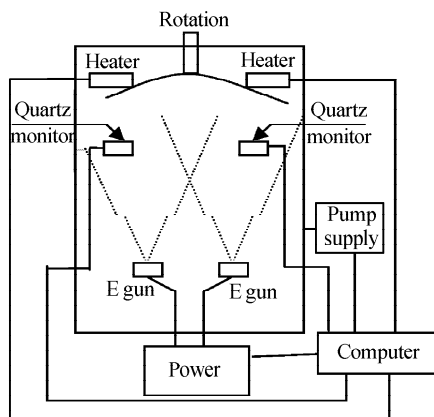


图7 非均匀膜的沉积腔结构

Fig. 7 Configuration of the deposition chamber of inhomogeneous coatings

3.3 有待进一步解决和分析的问题

在德鲁德分布非均匀膜的模拟分析中,假设两种膜料沉积的单分子大小近似相等,沉积速率为线性变化,但在实际制备中,膜料的单分子大小总有差别,且由于设备条件的限制,沉积速率的控制误差等因素将会对非均匀膜的厚度和折射率的变化规律等带来误差;另外,沉积的两种膜料是否会发生反应生成固体等,都是需要进一步探讨的问题.

参考文献

- 林永昌,卢维强.光学薄膜原理.北京:国防工业出版社,1990.139~141
Lin Y C, Lu W Q. The principles of Optical Thin Film. Beijing: National Defence Industry press, 1990. 332 ~ 334
- Szip"ocs R, K"oh"azi-Kis A. Theory and design of chirped dielectric laser mirrors. *Appl Phys B*, 1997, **65**: 115 ~ 135
- Linkens D A, Abbod M F, Metcalfe J, et al. Modeling and fabrication of optical interference rugate filters. *ISA Transactions*, 2001, **40**: 3 ~ 16
- 尹树百.薄膜光学—理论与设计.北京:科学出版社,1987.279~305
Yin S B. Thin Film Optics: Theory and Design. Beijing: The Academic press, 1987. 279 ~ 305

- 5 占美琼,张东平,杨健,等. 石英晶体振荡法监控膜厚研究. 光子学报,2004,**34**(5):585~588
Zhan M Q, Zhang D P, Yang J, *et al.* *Acta Photonica Sinica*,2004, **33**(5):585~588
- 6 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量的研究. 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
- 7 朱勇,沈伟东,叶辉,等. 磁控反应溅射 SiN_x 薄膜的研究. 光子学报,2005,**34**(1):154~157
Zhu Y, Shen W D, Ye H, *et al.* *Acta Photonica Sinica*, 2005, **34**(1):154~157

Simulation Analysis of Optical Characteristics of Drude Inhomogeneous Coatings

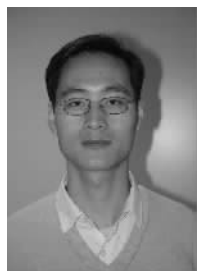
Shen Zicai, Wang Yingjian, Fan Zhengxiu, Shao Jianda

Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, Graduate School of the Chinese Academy of Sciences, shanghai 201800

Received date:2004-05-14

Abstract On the basis of Drude theory, the relationship of refractive index and the deposition rate, which were changeable in the course of deposition of inhomogeneous coatings, was discussed firstly. Then using computer aided simulation, the optical characteristics of inhomogeneous dielectric coatings, which was mixture of different materials from different evaporated sources, was also discussed. The discussion included single period and multi-periods, positive change and negative change, integral and half-baked periods, etc. The minimum of transmittance attenuated by thrice polynomial of periods was discovered, and the negative Drude inhomogeneous coatings with half-baked periods was the optimization design of Notch filters.

Keywords Optical films; Inhomogeneity; Filter; Optimization



Shen Zicai was born in March of 1980, in Shandong Province. He received the bachelor degree in Shandong Institute of Light Industries in 2002. Now he is working for his master degree in R&D center for optical thin film coatings, Shanghai Institute of Optics and Mechanics, Chinese Academy of Sciences. His research interests include the area of polarized light technology and gradient refractive index films or inhomogeneous coatings.