

单层二氧化钛薄膜的偏振散射特性

潘永强,田爱玲,杭凌侠

(西安工业大学 光电工程学院,陕西 西安 710032)

摘要: 为了用散射法研究单层薄膜表面粗糙度的变化规律,以光学薄膜矢量光散射理论为基础,分析了单层二氧化钛薄膜分别在完全相关和完全非相关模型下的偏振双向反射分布函数,以及 P 偏振入射光引起的 P 偏振的 $BRDF_{pp}$ 随散射方位角的变化关系。理论研究结果表明:随着散射方位角的变化,P 偏振入射光引起的 P 偏振的 $BRDF_{pp}$ 强烈依赖于膜层界面粗糙度的相关特性。在完全相关模型下,随着入射角的增加, $BRDF_{pp}$ 随着散射方位角变化时所出现的谷值会随着入射角的增加而减小。

关键词: 薄膜; 矢量光散射; 偏振散射; 偏振双向反射分布函数

中图分类号: O484 **文献标志码:** A **文章编号:** 1007-2276(2015)10-3015-05

Polarized light scattering of single titanium dioxide thin film

Pan Yongqiang, Tian Ailing, Hang Lingxia

(School of Photoelectric Engineering, Xi'an Technological University, Xi'an 710032, China)

Abstract: In order to study the changing rule of single layer thin film surface roughness using light scattering, the polarized bidirectional reflectance distribution function (P-BRDF) of the single titanium dioxide thin film at fully correlated and uncorrelated model were researched respectively based on the vector scattering theory of optical thin film. The relationship of scattering azimuth angle and $BRDF_{pp}$, P-polarized scattered light caused by P-polarized incident light, was researched. The theoretical results show that $BRDF_{pp}$ strongly depends on the correlation between interfaces roughness of thin film and substrate with azimuth angle changing. The scattering azimuth angle of $BRDF_{pp}$ valley value can decrease with the increase of incident angle at fully correlated model. The result is reverse to uncorrelated model. $BRDF_{pp}$ does not appear valley value as the change of scattering azimuth angle.

Key words: thin film; vector light scattering; polarized light scattering;
polarized bidirectional reflectance distribution function (P-BRDF)

收稿日期:2015-02-24; 修订日期:2015-03-20

基金项目:陕西省自然科学基金研究计划(2014JM8333);陕西省教育厅专项科研计划(2013JK1108);
兵器预研支撑基金(9140A18020114BQ03251)

作者简介:潘永强(1974-),男,教授,硕士生导师,博士,主要从事薄膜工艺与薄膜检测技术的研究。Email:pyq_867@163.com

0 引言

在光学薄膜元件中,基底表面的微观形貌特性,即表面粗糙度影响着光学薄膜元件的光学特性与物理特性,如反射率、散射损耗、吸收损耗、薄膜的抗激光损伤特性等^[1-3]。其中,光学薄膜中的散射损耗是影响薄膜性能的重要因素之一,在某些对散射损耗有特殊要求的高质量光学薄膜元件中,散射对其质量有着重要的影响。在短波光学特别是软 X 射线光学领域,薄膜表面和界面粗糙度引起的光散射严重影响着薄膜的反射率;在高能量激光器系统化中,即使很小的光散射损耗也会大大降低光学薄膜的激光损伤阈值^[4];对于激光陀螺系统中的高反射镜而言,表面粗糙度引起的光散射也会使激光陀螺无法正常工作^[5-7]。因此,研究光学薄膜的表面散射、获取光学薄膜表面的微观结构信息、分析光学薄膜表面微观结构对改进光学薄膜沉积工艺、获取高质量的光学薄膜具有重要的现实意义。

目前,国外对于光学多层薄膜双向反射分布函数(BRDF)的研究主要有美国的标准技术研究所、德国夫琅禾费实验室和法国德赛实验室等^[8-9];国内对于光学薄膜双向反射分布函数的研究起步较晚,主要集中在中国科学院上海光学精密机械研究所和西安工业大学^[10-11]。且目前对于偏振状态对光学薄膜双向反射分布函数的研究则更少,而通过对光学薄膜双向反射分布函数的研究,可以获取光学薄膜表面的特征信息,这对于低散射损耗的高反射镜的膜系设计和制备工艺研究均具有重要的理论指导意义。

文中采用矢量光散射理论,利用双向反射分布函数,研究了单层二氧化钛(TiO₂)薄膜在与基底表面粗糙度与膜层界面粗糙度完全相关和完全非相关两种情况下的偏振双向反射分布函数,以及在不同入射角状态下的偏振双向反射分布函数的特性,为分析二氧化钛(TiO₂)薄膜的散射特性打下了良好的理论基础。

1 光学薄膜双向反射分布函数基础理论

基于一阶矢量散射微扰理论,当入射波长 λ 远大于光学薄膜表面均方根粗糙度 σ 时,根据参考文献[9]中关于微粗糙面的双向反射分布函数(BRDF)的定义:

$$BRDF \cdot \cos \theta_s = \frac{dP}{P_0 d\Omega} = Fg(k-k_0) \quad (1)$$

式中: $dP/d\Omega$ 表示在单位立体角 $d\Omega = \sin \theta d\theta d\Phi$ 内,散射方向 (θ_s, Φ_s) 上的微分散射光功率; θ_s 和 Φ_s 分别表示散射光方向的散射极化角和散射方位角; F 为与入射光的入射角、材料的折射率及偏振状态相关的光学因子; $g(k-k_0)$ 为表面粗糙度的功率谱密度函数, k 和 k_0 分别为入射光和散射光的波矢量,其中 $k = (2\pi/\lambda)\sin \theta_0$, $k_0 = (2\pi/\lambda)\sin \theta_s$, θ_0 为入射角。谱密度函数是自协方差函数 $G(\tau) = \langle h(r)h(r+\tau) \rangle$ 的傅里叶变换, $h(r)$ 为表面粗糙度的轮廓高度函数, τ 表示滞后长度, r 表示 $x-y$ 平面内的单位矢量。当入射光垂直表面入射,且表面为各向同性时,有 $g(k-k_0) = g(k)$ 。

公式(1)表示的是单个表面的 BRDF,对于具有多层结构光学薄膜,其双向反射分布函数可写为^[12]:

$$BRDF \cdot \cos \theta_s = \frac{dP}{P_0 d\Omega} = \sum_{i=0}^N \sum_{j=0}^N F_i F_j^* g_{ij}(k) \quad (2)$$

式中: F_i 表示 N 层膜中第 i 个界面的光学因子,该光学因子与入射光波长、入射角、散射角以及多层光学薄膜中每层膜的折射率和厚度有关; F_j^* 为光学因子 F_j 的共轭复数; g 为功率谱密度函数,是 $G_{ij}(\tau) = \langle h_i(r)h_j(r+\tau) \rangle$ 的 Hankel 变换,其中, h_i 为第 i 个界面的粗糙度轮廓。如果 $i=j$,则 G_{ij} 为自协方差函数,否则表示互相关函数,即两个粗糙界面之间的粗糙度的相关关系。为了将不同界面粗糙度的相关特性对双向反射分布函数的影响区分开来,Amra^[13]将公式(2)改写为:

$$BRDF \cdot \cos \theta_s = \sum_{i=0}^N |F_i|^2 g_{ii}(k) + \sum_{i=0}^N \sum_{\substack{j=0 \\ j \neq i}}^N F_i F_j^* g_{ij}(k) \quad (3)$$

式中:第一项表示散射光强度的简单迭加;第二项表示散射光的相干迭加。如果 $G_{ij} = 0$,即 $g_{ij} = 0$,则公式(3)可简写为公式(2)所示的界面粗糙度的完全非相关模型。如果多层光学薄膜中各个界面的粗糙度与基底的表面粗糙度完全相同,即 $G_{ii} = G_{ij} = G$,从而有 $g_{ii} = g_{ij} = g$,则多层膜界面完全相关模型的 BRDF 可表示为:

$$BRDF \cdot \cos \theta_s = \frac{dP}{P_0 d\Omega} \left| \sum_{i=0}^N F_i \right|^2 g(k) \quad (4)$$

根据入射光和散射光的偏振状态,薄膜的 BRDF 有四种不同偏振态的表达式,即 $BRDF_{pp}$ 、 $BRDF_{ps}$ 、 $BRDF_{ss}$ 和 $BRDF_{sp}$,其中 $BRDF_{ps}$ 表示为入射 P 偏振光

引起的 S 偏振方向上的散射光, 其余类同。

2 理论计算及结果分析

2.1 偏振态及方位角对 BRDF 的影响

采用公式(3)对光学薄膜不同偏振态下的双向反射分布函数进行计算, 计算时基底为 K9 玻璃, 折射率 $n=1.52$, 基底表面均方根粗糙度 $\sigma=2.2 \text{ nm}$, 相关长度 $l=1 \text{ 000 nm}$; 单层二氧化钛薄膜的折射率为 2.15, 薄膜厚度为 73.6 nm, 其光学厚度恰好为中心波长 633 nm 的 1/4。当入射角 θ_i 和散射角 θ_s 等于 45° 、采用上述理论计算的界面粗糙度为完全相关模型时, 四种偏振状态下的双向反射分布函数, 即 $BRDF_{pp}$ 、 $BRDF_{ps}$ 、 $BRDF_{ss}$ 和 $BRDF_{sp}$ 随散射方位角 Φ_s 的变化关系如图 1 所示。从图中可以看出, 在二氧化钛薄膜表面和基底表面粗糙度为完全相关模型, 即二氧化钛薄膜表面轮廓完全复现基底表面轮廓的情况下, 随着 Φ_s 的增加, $BRDF_{ss}$ 逐渐减小, 且在 Φ_s 为 90° 时没有信号; $BRDF_{ps}$ 和 $BRDF_{sp}$ 随着 Φ_s 的增加逐渐减小, 且在任一方位角处, $BRDF_{ps}$ 与 $BRDF_{sp}$ 的大小相等。值得注意的是: 随着 Φ_s 的增加, $BRDF_{pp}$ 在 57° 附近出现了一个最低谷, 该最低谷正好出现在薄膜的布儒斯特角 ($\theta_{ob}=50^\circ$) 处。而在二氧化钛薄膜的表面粗糙度与基底粗糙度完全非相关的情况下, 计算得到的 $BRDF_{pp}$ 、 $BRDF_{ps}$ 、 $BRDF_{ss}$ 和 $BRDF_{sp}$ 随着 Φ_s 的变化关系如图 2 所示。

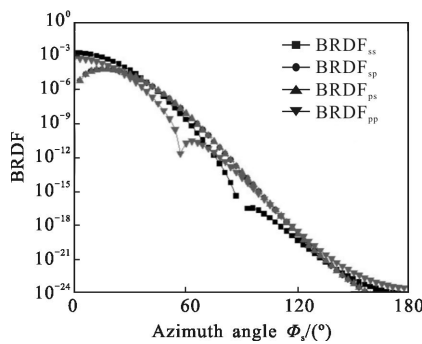


图 1 完全相关模型下, 理论计算的入射光和散射光四种偏振状态 (PP, PS, SS and SP) 下 BRDF 随散射方位角的变化
Fig.1 BRDF calculated for fully correlated interfaces versus azimuth angle for $BRDF_{pp}$, $BRDF_{ps}$, $BRDF_{ss}$ and $BRDF_{sp}$

从图 1 与图 2 中双向反射分布函数计算结果的比较可以看出, 无论是完全相关模型还是完全非相

关模型, $BRDF_{ps}$, $BRDF_{ss}$ 和 $BRDF_{sp}$ 这三种偏振态下的双向反射分布函数随散射方位角的变化趋势基本一致, 只有在界面粗糙度完全相关模型下, P 偏振入射光引起的 P 偏振的双向反射分布函数 $BRDF_{pp}$ 随着散射方位角的增加在接近 60° 附近存在一个明显的谷值, 即对于 $BRDF_{pp}$ 而言, 随着散射光方位角的变化, 其变化趋势主要由光学薄膜与基底界面粗糙度的相关特性决定, 且在光学薄膜布儒斯特角的附近, 这两种不同界面粗糙度相关模型下 $BRDF_{pp}$ 的变化趋势的差异更为明显。

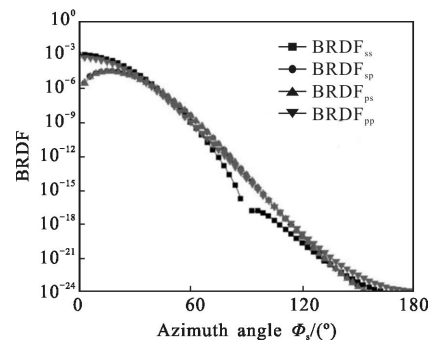


图 2 完全非相关模型下, 理论计算的入射光和散射光四种偏振状态 (PP, PS, SS and SP) 下 BRDF 随散射方位角的变化
Fig.2 BRDF calculated for fully uncorrelated interfaces versus azimuth angle for $BRDF_{pp}$, $BRDF_{ps}$, $BRDF_{ss}$ and $BRDF_{sp}$

2.2 入射角对 $BRDF_{pp}$ 的影响

图 3 为在表面均方根粗糙度 $\sigma=2.2 \text{ nm}$ 、表面粗糙度的相关长度 $l=1 \text{ 000 nm}$ 、折射率为 1.52 的 K9 玻璃上沉积厚度为 73.6 nm 的二氧化钛薄膜后, 当薄膜表面粗糙度完全复现基底表面粗糙度轮廓时, P 偏振入射光引起的 P 偏振的偏振双向反射分布函数 $BRDF_{pp}$

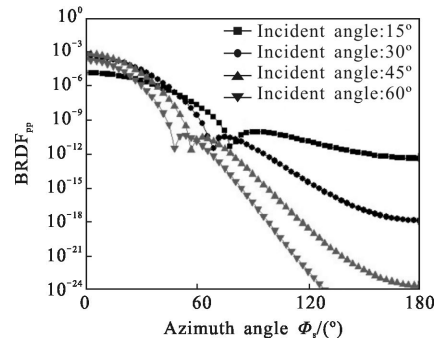


图 3 界面粗糙度完全相关模型下, 理论计算的不同入射角下 $BRDF_{pp}$ 随散射方位角的变化
Fig.3 $BRDF_{pp}$ calculated for fully correlated interfaces versus azimuth angle at different incident angle

在散射角为 45° 、入射角分别为 15° 、 30° 、 45° 和 60° 时随散射方位角的变化情况。从图中可以看出,在不同入射角下, $BRDF_{pp}$ 随着散射方位角变化时都会出现一个散射极小的谷值,且随着 P 偏振光入射角的增加,该谷值所对应的散射方位角会逐渐减小,但极小谷值的大小不变。分析其原因发现,这主要是由于随着入射角的增加,二氧化钛薄膜的有效光学厚度减小的缘故。

图 4 为在二氧化钛薄膜表面粗糙度与基底粗糙度完全非相关模型下,理论计算的 P 偏振入射光引起的 P 偏振的偏振双向反射分布函数 $BRDF_{pp}$,其中基底和薄膜的光学常数同上。

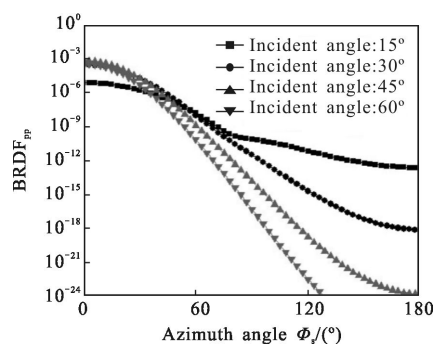


图 4 界面粗糙度完全非相关模型下,理论计算的不同入射角下 $BRDF_{pp}$ 随散射方位角的变化

Fig.4 $BRDF_{pp}$ calculated for fully uncorrelated interfaces versus azimuth angle at different incident angle

从图中可以看出,在表面粗糙度完全非相关模型下,不同的入射角下计算得到的 $BRDF_{pp}$ 随着散射方位角的变化趋势基本一致,都是随着散射方位角的增加而逐渐减小,只是当入射角较小时, $BRDF_{pp}$ 随着散射方位角增加而减小的趋势会逐渐变缓。

从图 3 和图 4 中 P 偏振光入射引起的 P 偏振散射计算结果的比较也可以看出,在多层光学薄膜界面粗糙度完全相关模型和界面粗糙度完全非相关模型下,理论计算的 $BRDF_{pp}$ 随着散射方位角的变化趋势不同,只有薄膜表面粗糙度和基底表面粗糙度完全相关的情况下, $BRDF_{pp}$ 随着散射方位角的变化时才会出现谷值,因此,从理论上可知,采用偏振光散射技术可以分析出基底表面单层薄膜表面粗糙度的演变规律以及薄膜表面粗糙度与基底表面粗糙度之间的相关特性。在实际的薄膜沉积中,为了降低薄膜的散射和吸收损耗,通常在工艺上应尽可能采用离

子束辅助沉积、离子束溅射及磁控溅射等技术来增加沉积粒子的动能,从而获得更加致密的薄膜,而这些技术都会促使薄膜的表面粗糙度尽可能复现基底的表面粗糙度轮廓,从而使薄膜表面与基底表面尽可能复合完全相关模型。

3 结论

文中以光学薄膜的矢量散射理论为基础,理论分析了单层二氧化钛薄膜表面粗糙度与基底表面粗糙度完全相关和完全非相关两种极限情况下偏振双向反射分布函数的特性,给出了入射光及散射光在四种偏振状态下的双向反射分布函数随散射方位角以及入射角之间的变化关系。通过分析和比较发现:在完全相关模型和完全非相关模型下, $BRDF_{ss}$ 、 $BRDF_{sp}$ 和 $BRDF_{ps}$ 随着散射方位角变化时,在两种模型下分别具有相同的变化趋势,而只有 $BRDF_{pp}$ 仅在完全相关模型下随着散射方位角变化时会出现一个散射为极小的谷值,且该谷值所对应的方位角会随着入射角的增加而逐步减小。这对于用散射法研究单层二氧化钛薄膜表面粗糙度的变化规律具有重要的理论指导意义。

参考文献:

- [1] Chen Shuyan, Qi Lihong, Chen Bo. Measurement and analysis of surface profiles by optical scattering method[J]. *Infrared and Laser Engineering*, 2006, 35 (1): 82-85. (in Chinese)
陈淑妍, 齐立红, 陈波. 光学散射法表面特征的测量与分析[J]. 红外与激光工程, 2006, 35(1): 82-85.
- [2] Sun Tengfei, Zhang Jun, Lv Haibing, et al. Influence of optical mirror surface contaminants on laser transmission characteristics [J]. *Infrared and Laser Engineering*, 2014, 43(5): 1444-1448. (in Chinese)
孙腾飞, 张骏, 吕海兵, 等. 光学镜面污染对激光传输特性的影响[J]. 红外与激光工程, 2014, 43(5): 1444-1448.
- [3] Zhang Guiyan, Yuan Hongtao, Miao Tongqun. Total integrated scatterometer for the application in optical surface roughness measurement [J]. *Infrared and Laser Engineering*, 2007, 36 (S): 265-269. (in Chinese)
张贵彦, 袁宏韬, 缪同群. 一种测量光学表面粗糙度的全积分散射仪[J]. 红外与激光工程, 2007, 36(S): 265-269.
- [4] Bu Yikun, Zhao Li, Zheng Quan, et al. Design method of

- high damage threshold laser mirror [J]. *Infrared and Laser Engineering*, 2006, 35(2): 183–186. (in Chinese)
卜铁坤, 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.
- [5] Hou Haihong, Hong Ruijin, Zhang Dongping, et al. Total integrated scattermeter for measuring the micro-roughness of optical thin films [J]. *Chinese Journal of 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.
- [6] Amra C, Grezes–Besset C, Bruel L. Comparison of surface and bulk scattering in optical multilayers[J]. *Appl Opt*, 1993, 32(28): 5492–5503.
- [7] Wang Anxiang, Wu Zhensen. Parameter inversion of shadowing function in light scattering model [J]. *Infrared and Laser Engineering*, 2014, 43(1): 332–337. (in Chinese)
王安祥, 吴振森. 光散射模型中遮蔽函数的参数反演[J]. 红外与激光工程, 2014, 43(1): 332–337.
- [8] Amra C. Theory and application of antiscattering single layers: antiscattering antireflection coatings [J]. *Appl Opt*, 1986, 25(16): 2695–2702.
- [9] Elson J M. Theory of light scattering from a rough surfaces with an inhomogeneous dielectric permittivity [J]. *Physical Review B*, 1984, 30(10): 5460–5480.
- [10] Hou Haihong, Shen Jian, Shen Zicai, et al. Stratified-interface scattering model for multilayer optical coatings[J]. *Acta Optica Sinica*, 2006, 26(7): 1102–1106. (in Chinese)
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.
- [11] Pan Yongqiang, Wu Zhensen, Hang Lingxia, et al. Interface roughness of multilayer dielectric optical thin film[J]. *Infrared and Laser Engineering*, 2009, 38(3): 433–436. (in Chinese)
潘永强, 吴振森, 杭凌侠, 等. 多层介质薄膜膜层间界面粗糙度及光散射[J]. 红外与激光工程, 2009, 38(3): 433–436.
- [12] Bousquet P, Flory F, Roche P. Scattering from multilayer thin films: theory and experiment[J]. *Journal of the Optical Society of America*, 1981, 71(9): 1115–1123.
- [13] Amra C. Light scattering from multilayer optics. I. tools of investigation [J]. *Journal of the Optical Society of America A*, 1994, 11(1): 197–210.