

电子束蒸发氧化锆薄膜的粗糙度和光散射特性

侯海虹^{1)†} 孙喜莲^{1)‡} 申雁鸣^{1)‡} 邵建达¹⁾ 范正修¹⁾ 易 葵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)

(2005 年 7 月 20 日收到, 2005 年 12 月 12 日收到修改稿)

利用电子束蒸发工艺,以 Ag 层为衬底,沉积了中心波长为 632.8nm 的氧化锆(ZrO_2)薄膜,膜层厚度在 80—480nm 范围内变化.研究了不同厚度样品的粗糙度变化规律和表面散射特性.结果发现,随着膜层厚度的逐渐增加,其表面均方根(RMS)粗糙度和总积分散射(TIS)均呈现出先减小后增大的趋势.利用非相关表面粗糙度的散射模型对样品的 TIS 特性进行了理论计算,所得结果与测量结果相一致.

关键词:氧化锆,表面粗糙度,标量散射,电子束蒸发

PACC:7865,6820,6114D,8115G

1. 引 言

氧化锆(ZrO_2)是可见光区的一种高折射率光学薄膜材料,具有很好的热稳定性、化学稳定性和机械特性,可被广泛应用于光学和电化学器件等重要领域^[1-4].实际应用中, ZrO_2 薄膜的表面(或界面)粗糙度是影响薄膜材料性能的重要因素^[5-7].例如,对于用作栅介质材料的 ZrO_2 薄膜而言,其均方根(Root Mean Square, RMS)粗糙度增加 0.1nm 时,漏电流将增加 10 倍^[8],可见薄膜的表面粗糙度对其性质产生了很大影响,因此相对精确地表征这一性质就显得尤为重要.另一方面,由粗糙度引起的表面散射对于光学系统的工作特性也有很大的损害,如在相干光学系统中,散射光的存在势必降低系统的对比度,严重的甚至可能使系统性能降低至无法正常工作的地步^[9-12].研究 ZrO_2 薄膜的表面粗糙度和表面散射分布规律,对于获取表面微观信息,深入认识散射损耗,稳定和提薄膜沉积工艺具有重要意义.

多年来,许多国内外学者一直致力于光学薄膜的散射研究,在理论和实验上均取得了巨大进展^[12-15].标量散射理论(Scalar Scattering Theory)^[16]产生于 20 世纪 60 年代,主要研究薄膜的总积分散射(Total Integrated Scattering, TIS)与表面 RMS 粗糙度之间的关系.1978 年 Eastman^[12]运用 Kirchhoff 边界条

件,将矩阵方法用于光线垂直入射情况下多层光学薄膜的散射问题中,研究了非恒等膜系(膜系中每层界面的粗糙度为随机和统计独立的情形)的散射,得到了具有代表性的非相关表面粗糙度(Uncorrelated Surface Roughness)散射模型.通过对实际样品的散射测量,发现理论值与实验结果符合得较好.测量薄膜光散射的方法很多,主要有 TIS 法,角分布法(ARS)和光学外差干涉法等^[17-19].其中 TIS 法具有仪器结构简单,成本低,测量速度快,测量精度高,不易受环境因素影响等特点,已被广泛应用于实际光学加工的质量控制中^[20,21].

本文对电子束蒸发法沉积的不同厚度的 ZrO_2 薄膜的表面 RMS 粗糙度的变化规律及散射特性进行了研究.衬底 Ag 膜和样品 ZrO_2 薄膜的表面 RMS 粗糙度由光学干涉轮廓仪测得,利用 TIS 法测量了薄膜在镜向反射附近的散射,根据 Eastman 的非相关表面粗糙度模型对样品的 TIS 进行了理论分析,并与实验结果进行了比较,发现理论模型可以很好地预测实验结果.

2. 非相关表面粗糙度模型^[12]

该模型认为光学多层膜系中的光散射源于各界面的粗糙度,同时每个界面的均方根粗糙度是独立随机变量.考虑了以下近似:1)界面粗糙度远远小于

† E-mail: haihonghou@siom.ac.cn

入射波长,即 $\sigma \ll \lambda/2$ 光线垂直入射,忽略光线的偏振效应;3)粗糙界面的面形轮廓函数 $f(x)$ 呈 Gauss 分布,平均值为 0,均方根为 σ (即表面的 RMS 粗糙度);4)入射介质不存在吸收;5)基底为半无限大且不存在反射。

考虑具有粗糙界面的 m 层膜系, n_i 和 d_i 分别为每层的折射率和厚度,衬底折射率为 n_s ,其中 $s = m + 1$,波长为 λ 的光线由折射率为 n_0 的介质垂直入射,则对应的特征矩阵为

$$\begin{bmatrix} E_0^+ \\ E_0^- \end{bmatrix} = \mathbf{P} \begin{bmatrix} E_s^+ \\ E_s^- \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} P_1 & P_3 \\ P_2 & P_4 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} E_s^+ \\ E_s^- \end{bmatrix}, \quad (1)$$

其中 E_0^+ , E_0^- 为膜系顶层表面的入射电场和反射电场; E_s^+ , E_s^- 为衬底中电场的正向和负向分量, \mathbf{P} 为膜系的特征矩阵,由若干矩阵相乘得到

$$\mathbf{P} = S_{01} \cdot I_{01} \cdot T_1 \cdot S_{12} \dots T_m \cdot S_{m,s} \cdot I_{m,s}, \quad (2)$$

其中 S_{ij} 为相邻的第 i 层与第 j 层之间的粗糙界面引起的散射矩阵

$$S_{ij} = \frac{1}{(1 - r_{ij}^2)} \begin{bmatrix} a & b \\ b^* & a^* \end{bmatrix}, \quad (2a)$$

$$a = \{\exp[ik\Delta_{ij}f_j(x)] - r_{ij}^2 \exp[ik\Sigma_{ij}f_j(x)]\}, \quad (2b)$$

$$b = r_{ij} \{\exp[ik\Sigma_{ij}f_j(x)] - \exp[ik\Delta_{ij}f_j(x)]\}, \quad (2c)$$

$$\Delta_{ij} = n_i - n_j, \quad (2d)$$

$$\Sigma_{ij} = n_i + n_j, \quad (2e)$$

式中“ $*$ ”表示共轭, $f_j(x)$ 为粗糙界面的面形轮廓函数。

I_{ij} 为第 i 层与第 j 层之间的界面传播矩阵

$$I_{ij} = \frac{1}{t_{ij}} \begin{bmatrix} 1 & r_{ij} \\ r_{ij} & 1 \end{bmatrix}, \quad (3)$$

r_{ij} 和 t_{ij} 分别为菲涅耳振幅反射系数和透射系数

$$r_{ij} = \frac{n_i - n_j}{n_i + n_j}, \quad (3a)$$

$$t_{ij} = \frac{2n_i}{n_i + n_j}, \quad (3b)$$

T_j 表示光线在第 j 层介质中的传播矩阵

$$T_j = \begin{bmatrix} e^{i\phi_j} & 0 \\ 0 & e^{-i\phi_j} \end{bmatrix}, \quad (4)$$

其中 ϕ_j 为第 j 层介质的位相厚度

$$\phi_j = \frac{2\pi}{\lambda} n_j d_j, \quad (4a)$$

根据前面已提到的近似条件,可以推导得到多层膜的振幅反射系数为

$$\rho = p_2/p_1, \quad (5)$$

表面总积分散射 TIS 为 ρ 的方差 $D(\rho)$,

$$TIS = D(\rho) = \rho\rho^* - \rho\rho^*, \quad (6)$$

由上述推导过程可知,如果已知膜系中每层薄膜介质的折射率 n_i ,厚度 d_i 及界面 RMS 粗糙度 σ_{ij} ,则可以根(6)式得到多层膜的散射特性。

3. 实 验

考虑到 TIS 测量中透明衬底的体散射和背面散射可能会对 ZrO_2 薄膜的表面 TIS 产生的影响^[21],实验中选择高反的金属 Ag 层为衬底.先在 K9 玻璃上沉积 Ag 层,然后在其上分别沉积厚度为 80nm, 160nm, 320nm 和 480nm 的 ZrO_2 薄膜,设计波长 $\lambda = 632.8\text{nm}$,所有 Ag 膜在同一实验条件下沉积得到.样品结构见图 1.

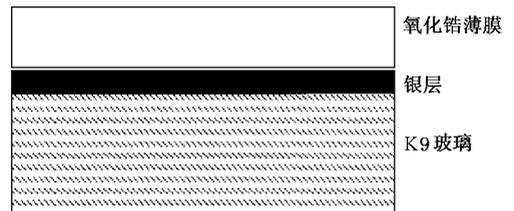


图 1 Ag 膜衬底上的 ZrO_2 薄膜

采用直流平面磁控溅射法沉积 Ag 层,制备前用去离子水、酒精、丙酮对 K9 基片进行超声清洗,然后用高纯氮气吹干.金属 Ag 靶纯度为 99.999%,靶直径 70mm,靶与基片的距离为 140mm.以氩气作为溅射气体,经优化工艺,选取工作气压为 0.3Pa,溅射电流 0.15A.沉积过程在室温条件下进行,薄膜的沉积速率为 5.2nm/min. ZrO_2 薄膜采用电子束蒸发工艺沉积,膜料呈颗粒状,纯度为 99.9%,实验本底真空为 $2 \times 10^{-3}\text{Pa}$,沉积压强为 $1.0 \times 10^{-2}\text{Pa}$,通过光控和晶控来精确控制薄膜厚度.为了避免造成 Ag 层的氧化,沉积 ZrO_2 薄膜时保持基底温度为 40—50℃.

衬底 Ag 和样品 ZrO_2 薄膜的表面 RMS 粗糙度由 WYKO NT1100 型光学轮廓仪测得,采用 PSI (Phase Shifting Interferometry) 测量模式,物镜放大倍数为 5.利用光源波长为 632.8nm 的总积分散射仪测量了 ZrO_2 薄膜的表面 DRS,测量装置及原理详见文献[23].TIS 测量时,沿样品上两条互相垂直的直

线进行逐点扫描,相邻取样点的间隔为 3mm,然后对所有测量值取平均.样品表面探测光的光斑尺寸为 1mm,仪器测量的标准误差为 10^{-4} 量级.

4. 结果和讨论

图 2 给出了 400—700nm 波长范围内 K9 玻璃在沉积 Ag 层前后的透射率曲线.可以看出,在整个测量范围内,未沉积 Ag 层的 K9 基片的透过率约为 92%,而沉积 Ag 层后的透过率接近 0,尤其在大于 500nm 的波段这种趋势更加明显.上述结果表明,几乎没有光线能够穿过 Ag 层衬底,也就是说此时的 Ag 层已经完全表现出了 Ag 的体特性.这样,在测量 ZrO_2 薄膜的 TIS 值过程中就避免了 K9 玻璃的体散射和表面散射所产生的影响.

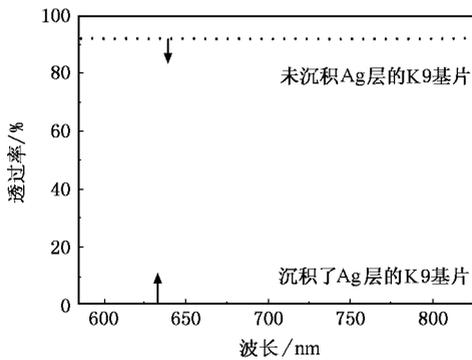


图 2 K9 玻璃上沉积 Ag 层前后的透射曲线比较

表 1 不同厚度 ZrO_2 薄膜的表面 RMS 粗糙度

| ZrO_2 薄膜厚度/nm | 80 | 160 | 320 | 480 |
|-----------------|------|------|------|------|
| RMS 粗糙度/nm | 0.89 | 0.86 | 0.80 | 0.84 |

表 1 给出了不同厚度下 ZrO_2 薄膜的表面 RMS 粗糙度值.薄膜沉积前,衬底 Ag 膜的粗糙度为 0.92nm.由表中看出, ZrO_2 薄膜的粗糙度在小于 320nm 的范围内,随薄膜厚度的增加由 0.89nm 逐渐减小到 0.80nm.厚度大于 320nm 以后,粗糙度值又从 0.80nm 逐渐增大到 0.84nm.粗糙度的这种变化是由薄膜沉积过程决定的.在沉积的初始阶段,薄膜生长对于粗糙的衬底表面有填平作用,膜层增加会使生长界面趋于平滑,从而表面粗糙度逐渐减小.随着薄膜厚度的进一步增加,衬底对薄膜表面的影响不断减小,薄膜将按照自身的规律生长,因此粗糙度变大.

表 2 为 632.8nm 波长下测量得到的不同厚度

ZrO_2 薄膜的 TIS 值,可见所有样品的散射量级均为 10^{-4} .薄膜厚度在 80—320nm 范围内变化时,TIS 值逐渐减小,在 320—480nm 波段,TIS 值又有所增加.结合表 1 可以发现, ZrO_2 薄膜的 TIS 值与表面 RMS 粗糙度随膜层厚度的变化规律是非常一致的,可见,薄膜的表面粗糙度大小会对 TIS 产生明显的影响.在实际应用中,若要降低介质表面光散射所造成的光能量损耗,通过提高元件表面加工精度,减小其表面粗糙度是一种非常有效的方法.

表 2 不同厚度 ZrO_2 薄膜在 632.8nm 波长下的 TIS 测量值

| ZrO_2 薄膜厚度/nm | 80 | 160 | 320 | 480 |
|-----------------|------|------|------|------|
| TIS/ 10^{-4} | 4.91 | 2.89 | 2.60 | 3.17 |

利用非相关表面粗糙度模型计算得到了样品的 TIS 值,结果见表 3.

表 3 不同厚度 ZrO_2 薄膜在 632.8nm 波长下的 TIS 理论值

| ZrO_2 薄膜厚度/nm | 80 | 160 | 320 | 480 |
|-----------------|------|------|------|------|
| TIS/ 10^{-4} | 5.44 | 3.56 | 3.28 | 3.72 |

比较表 3 和表 2 可以看出,在 632.8nm 波长下,理论和测量所得到的 ZrO_2 薄膜的 TIS 随膜度的变化规律吻合得很好.可见,利用非相关表面粗糙度模型可以对本实验中的 ZrO_2 薄膜的散射特性进行很好的预测.

另外还可以发现,对于所有厚度相同的 ZrO_2 薄膜,其 TIS 的计算结果都要比测量结果稍微偏大,这主要与 TIS 测量系统中积分球的结构特点相关.积分球上入射光孔,样品开孔和吸收小孔的存在,不可避免地会引起镜向光线邻域内散射光的遗失,探测器将无法采集到这部分光线,从而导致了测量值的偏低.

5. 结 论

利用电子束蒸发技术在金属 Ag 膜上沉积了不同厚度的 ZrO_2 薄膜,并通过实验和理论对样品表面的散射特性进行了研究,结果表明非相关表面粗糙度模型的计算结果与测量结果符合较好,可以用来预测样品的散射特性.样品表面 RMS 粗糙度随厚度的变化规律表明,初始阶段的薄膜沉积对衬底的粗糙表面起填平作用,可使生长界面趋于平滑,表面 RMS 粗糙度逐渐减小;薄膜厚度的逐渐增加会降低衬底粗糙表面对生长界面的影响,薄膜将按照自身的规律生长,其粗糙度呈现出逐渐增大的趋势.薄膜

的 TIS 值与表面 RMS 粗糙度随膜厚的变化规律一致,表明二者之间密切相关.

- [1] Shao S Y , Fan Z X , Shao J D , He H B *et al* 2003 *Thin Solid Films* **59** 445
- [2] Liu H Q , Wang L L , Qin W P 2004 *Acta Phys. Sin.* **53** 282 (in Chinese) [刘晃清、王玲玲、秦伟平 2004 物理学报 **53** 282]
- [3] Zhang D P , Zhan M Q , Fang M *et al* 2004 *Chin. Opt. Lett.* **2004** 2 364
- [4] Thomas I M 1994 *SPIE* **2288** 50
- [5] Qi H J , Huang L H , Tang Z S *et al* 2003 *Thin Solid Films* **444** 146
- [6] Meinel K , Schindler K M , Neddermeyer H 2002 *Surf. Sci.* **515** 226
- [7] Cassir M , Goubin F , Bernay C *et al* 2002 *Appl. Surf. Sci.* **193** 120
- [8] Muller D A , Morris M D , Green M L *et al* 1999 *Nature* **399** 758
- [9] Qiu S J , Shi C R , Wu H Z 2002 *Acta Phys. Sin.* **51** 1870 (in Chinese) [邱东江、石成儒、吴惠桢 2002 物理学报 **51** 1870]
- [10] Guenther H K , Wierer P G , Bennett J M 1984 *Appl. Opt.* **23** 3820
- [11] Carosso P A , Carosso N J P 1986 *Appl. Opt.* **25** 1230
- [12] Eastman J M 1978 *Physics in Thin Films* (New York : Academic) p167
- [13] Camiglia C K 1979 *Opt. Engin.* **18** 104
- [14] Liu S Y , Teng H , Ding Y K *et al* 1997 *Acta Phys. Sin.* **46** 1917 (in Chinese) [刘慎业、滕浩、丁永坤等 1997 物理学报 **46** 1917]
- [15] Guo L X , Wu Z S 2001 *Acta Phys. Sin.* **50** 42 (in Chinese) [郭立新、吴振森 2001 物理学报 **50** 42]
- [16] Beckmann P , Spizzichino A 1963 *The scattering of electromagnetic waves from rough surfaces* (New York : Pergamon) p17
- [17] Duparré A , Kassam S 1993 *Appl. Opt.* **32** 5475
- [18] Stover J C , Sklar E 1985 *Opt. Eng.* **24** 404
- [19] Xu W D , Li X S 1994 *Acta opt. Sin.* **14** 1303 (in Chinese) [徐文东、李锡善 1994 光学学报 **14** 1303]
- [20] Detrio J A , Miner S M 1985 *Opt. Eng.* **24** 419
- [21] Stout K J , Obray C , Jugles J 1985 *Opt. Eng.* **24** 414
- [22] Hou H H , Yi K , Shang S Z *et al* 2005 *Appl. Opt.* **44** 6163
- [23] Hou H H , Yi K , Shao J D *et al* 2004 *SPIE* **5638** 638

Roughness and light scattering properties of ZrO₂ thin films deposited by electron beam evaporation

Hou Hai-Hong^{1)†} Sun Xi-Lian¹⁾²⁾ Shen Yan-Ming¹⁾²⁾ Shao Jian-Da¹⁾ Fan Zheng-Xiu¹⁾ Yi Kui¹⁾

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

2) (Graduate School of the Chinese Academy of Sciences , Beijing 100039 , China)

(Received 20 July 2005 ; revised manuscript received 12 December 2005)

Abstract

Zirconium oxide (ZrO₂) coatings for 632.8nm center wavelength were deposited on the Ag layer by electron beam evaporation , optical thickness of which varied in the range of 80—480nm. Surface roughness and scattering characteristics of ZrO₂ coatings with different thickness were investigated. It was found that with the gradually increase of the thickness , both roughness and total integrated scattering (TIS) of the samples decreased firstly and then increased. These results indicated that TIS of the samples mainly depended on the surface roughness. According to the uncorrelated surface roughness scattering model , scattering properties of the samples were analyzed theoretically. The calculated TIS values based on this model agreed well with that obtained by TIS measurements.

Keywords : ZrO₂ coatings , surface roughness , scalar scattering , electron beam evaporation

PACC : 7865 , 6820 , 6114D , 8115G