

一种测定单层薄膜光学常数的新方法*

钟 钦 曾 明

(国防科技大学应用物理系, 长沙)

摘要: 本文介绍一种新的迭代法和条件优化方法, 用于单层非吸收膜和吸收膜的光学常数的精确测定。一般方法中的多解问题在这里被很好地抑制和消除。文中给出一些介质膜和金属膜的测定实例, 其多角度入射下的反射率和透射率值都是在DF透反仪上测量得到的。

A new method for determination of optical constants of optical coatings

Zhong Qin, Zeng Ming

(National University of Defence Technology)

Abstract: A new iteration and conditional optimization method for calculating the optical constants of nonabsorbing and absorbing single-film, based on the measuring the reflectance and transmittance at different incident angles, is given out. The problem of multiple solution which often happens in other method is well eliminated. The measuring results of several dielectric and metal thin films are given, and the reflectances and transmittance are measured by DFTR-meter.

一、引 言

为了高质量光学薄膜的制备, 尽可能精确地测定其光学常数是非常必要的。多年来, 在这个课题上的大量文章^[1~10]证明了它的重要性。目前, 已经发展了许多确定薄膜光学常数的方法, 但似乎每个实验室都有自己所选择的方法。在这些方法中, 直接测量光强度值(偏振光或非偏振光测量), 特别是透射光谱测量法, 仍然是很普遍使用的方法。在大部分情况

* 本文内容在TFC'91全国薄膜学术讨论会上被录用。

[7] 高增益雪崩探测器。激光译丛, 1974; (4): 12

*

*

*

作者简介: 唐中华, 男, 1958年出生。工程师。1983年毕业于清华大学无线电电子学系。现从事激光及其应用技术的研究工作。

收稿日期: 1992年4月30日。

下, 由于薄膜的折射率、消光系数和物理厚度不是反射率和透射率的单值函数, 人们无法用一个代数表达式从反射率和透射率简单地算出它们。随着计算机技术的高速发展, 使用数值方法来解复杂方程已变得较为容易。目前, 使用最广泛的是迭代和优化计算方法, 已有不少的研究工作者在此方面做了大量的工作^[8~10]。在这些方法中, 一个重要的问题是多解的存在, 它导致了解的不确定性和不正确性。为了避免这个问题, 往往使用其它的测量值, 如物理厚度, 反射相移等, 来参加计算。但同时它又增加了测量的复杂性和带来了新的误差因素。

在本文中, 不同角度下偏振光的反射率和透射率值被用来作为实验测量值。对单层无吸收薄膜, 牛顿迭代法被用来获得其折射率和物理厚度, 最终解是唯一的。对单层吸收薄膜, 统计实验法^[11]被用来求解其折射率、消光系数和物理厚度, 但搜索区域仅在二维 (n, k) 平面内一个很小区域上, 物理厚度则由一个条件方程来获得。这样, 多解问题被很好地抑制和消除, 最终解具有较好的唯一性。

本文中的实验数据均在 D F 透反仪^[12]上得到。在该仪器中, 一台稳频氦氛激光器(632.8nm)作为单色平面偏振光源(测量点光斑大小为0.2mm), 角度读数误差为 $\pm 0.05^\circ$ 。该仪器的可重复测量精度达0.01%, 甚至更高。使用这一高精度反射率和透射率测量仪, 使精确地确定单层薄膜的光学常数成为可能。

二、计算方法

1. 单层非吸收膜

对于透明基片上的单层非吸收薄膜, 单色平面偏振光在角度为 θ_0 下的反射率为:

$$R = \frac{\eta^2(\eta_s - \eta_0)^2 + (\eta^2 - \eta_s^2)(\eta^2 - \eta_0^2)\sin^2\delta}{\eta^2(\eta_s + \eta_0)^2 + (\eta^2 - \eta_s^2)(\eta^2 - \eta_0^2)\sin^2\delta} \quad (1)$$

式中, 相厚 $\delta = 2\pi n d \cos\theta / \lambda$, θ 为薄膜内的折射角, λ 为波长, η_0 , η_s 和 η 分别为入射介质、基底和薄膜的光学导纳。从(1)式得到薄膜折射率和物理厚度的关系如下:

$$d = F(n, \theta_0) = \frac{\lambda}{2\pi n \cos\theta} \left(\left[\frac{m}{2} \right] \pi + (-1)^{m-1} \arcsin \sqrt{\frac{\eta^2 c}{(\eta^2 - \eta_s^2)(\eta^2 - \eta_0^2)}} \right) \quad (2)$$

式中, $c = \frac{4\eta_s \eta_0}{1-R} - (\eta_s + \eta_0)^2$, $m = 1, 2, 3, 4 \dots$ 。

为了保证(2)式得到的厚度都是有意义的(物理解), (2)式中根号内的值必须恒为正值而且不大于1, 就是说, 折射率与反射率之间必须满足一定的关系。反射率是已知的测量值, 因此折射率必须在由下式确定的范围内取值:

$$\eta^2 \geq \eta_s \eta_0 \frac{1 + \sqrt{R}}{1 - \sqrt{R}}, \quad R > \frac{(\eta_s - \eta_0)^2}{(\eta_s + \eta_0)^2} \quad (3a)$$

$$\text{或 } \eta_s \eta_0 \frac{1 - \sqrt{R}}{1 + \sqrt{R}} \leq \eta^2 \leq \eta_s \eta_0 \frac{1 + \sqrt{R}}{1 - \sqrt{R}}, \quad R < \frac{(\eta_s - \eta_0)^2}{(\eta_s + \eta_0)^2} \quad (3b)$$

这个允许区域在求解中和取迭代初始值时是非常有用的, 而且它仅仅由实验值唯一地确

定。从(2)式可看到, 对一个折射率值似乎有无穷多个厚度值与之对应, 我们知道事实上并非如此。因此, 首先必须确定最终解所在的周期, 即确定(2)式中的 m 值。一种常用的方法是用透射光谱曲线上的干涉级次来决定。在这里, 我们希望能直接从不同角度下的反射率来确定。为此, 需要测量多于两个的反射率值。对应每一个反射率值, 从(3)式中的等号关系((3b)式取右边等式)可获得一个折射率值, 这样就得到了多于两个的折射率值; 从(3)式中的不等式关系, 我们可以知道在这些折射率中有一个折射率 n_0 最接近于最终解, 有一个最差的折射率离最终解最远, 还有一个次最差的折射率离最终解为次最远。将折射率 n_0 以及最差折射率值所对应的反射率值和入射角度值代入(2)式, 则得到一组对应于不同 m 的厚度值。同样, 将折射率 n_0 以及次最差折射率值所对应的反射率值和入射角度值代入(2)式, 也相应地得到一组对应于不同 m 的厚度值。将两组厚度值之间对应于相同 m 值的厚度相减, 厚度差的绝对值为最小的 m 值就是最终解所对应的 m 。这样, 对应一个折射率值, (2)式给出唯一的厚度值。

对于两个入射角 θ_1 和 θ_2 及所对应的反射率值, 从(2)式可得到一个获得折射率的迭代公式(p 偏振光)如下:

$$n_1 = n_0 - \frac{F(n, \theta_1) - F(n, \theta_2)}{F'(n, \theta_1) - F'(n, \theta_2)} \quad (4)$$

$$\text{式中, } F'(n, \theta_0) = \frac{1}{n^2 \cos^2 \theta} \left(\frac{(-1)^m \lambda (\eta^4 - \eta_0^2) \cos 2\theta}{2\pi (\eta^2 - \eta_0^2) (\eta^2 - \eta_0^2) \cos \theta} - \frac{\eta^2 c}{(\eta^2 - \eta_0^2) (\eta^2 - \eta_0^2) - \eta^2 c} - nd \right),$$

式中, θ_0 可为入射角 θ_1 或 θ_2 , 而 θ 则是薄膜内对应的折射角。

迭代的初始值即为 n_0 。在某些情形下, 迭代开始是发散的, 此时, 定义一个新的函数 $D(n) = F'(n, \theta_1) - F'(n, \theta_2)$, 将这个函数的数值反号时所对应的折射率值作为新的迭代初始值, 再用(4)式进行迭代, 迭代过程即收敛。大多数情况下(4)式有两个解, 对其中的一个非正确解需要另外两个角度组合下的解来判断, 在它们的解之间必有一个解是相等的(对实验值来说应是很接近的), 最终获得唯一的折射率解。因此, 唯一地确定单层非吸收薄膜的折射率和厚度值需要至少三个角度下的反射率值。

2. 单层吸收薄膜

一般来说, 从强度测量值反射率和透射率无法用代数公式直接得到薄膜的三个光学常数——折射率、消光系数和物理厚度。普遍使用的方法是用数值优化计算, 即通过对三个光学常数的直接搜索和判断评价函数的大小来获得该薄膜的解。不幸的是, 多解问题常常使它们偏离正确解太远。我们曾经用已知的三个光学常数求出不同角度下的理论反射率和透射率值, 然后用统计试验法来求解光学常数, 发现当搜索区间稍大时, 搜索常常终止在偏离已知值较远的地方。一些研究人员^[9, 10]从反射率和透射率只求解折射率和消光系数, 而物理厚度则由其它方法测得。但它增加了测量的负担和计算中的误差因素。这里将介绍一种条件优化方法, 膜厚不再是一个自变量, 它是由反射率、透射率、折射率和消光系数所决定的, 这样自变量的个数也只有二个了。

对一个透明基片上的单层吸收薄膜, 入射角 θ_0 下的反射率和透射率表达式为:

$$R = \frac{\rho_1^2 + \rho_2^2 e^{-4v\beta} + 2\rho_1\rho_2 e^{-2v\beta} \cos(\psi_2 - \psi_1 - 2u\beta)}{1 + \rho_1^2 \rho_2^2 e^{-4v\beta} + 2\rho_1\rho_2 e^{-2v\beta} \cos(\psi_2 + \psi_1 - 2u\beta)}$$

$$T = \frac{\eta_s}{\eta_0} \frac{\tau_1^2 \tau_2^2 e^{-2v\beta}}{1 + \rho_1^2 \rho_2^2 e^{-4v\beta} + 2\rho_1\rho_2 e^{-2v\beta} \cos(\psi_2 + \psi_1 - 2u\beta)}, \quad (5)$$

式中, ρ 是振幅反射系数, ψ 是反射位相, τ 是电场强度切向分量的振幅透射系数, 而下标1和2分别对应于空气-薄膜界面和薄膜-基板界面, $u - iv = (n - ik) \cdot \cos\theta$ 和 $\beta = 2\pi d/\lambda$ 。

从(5)式可得到一个四次多项式:

$$X^4 + BX^3 + CX^2 + DX + \rho_2^4 = 0$$

式中, $X = e^{2v\beta}$

$$\left\{ \begin{aligned} B &= -2A \frac{1 + R\rho_1^2 - (\rho_1^2 + R)\cos 2\psi_1}{1 + \rho_1^4 - 2\rho_1^2 \cos 2\psi_1} \\ C &= \frac{A^2(1 + R^2 - 2R\cos 2\psi_1)}{1 + \rho_1^4 - 2\rho_1^2 \cos 2\psi_1} - 2\rho_2^2 \cos 2\psi_1 \\ D &= -2A\rho_2^2 \frac{\rho_1^2 + R - (1 + R\rho_1^2)\cos 2\psi_1}{1 + \rho_1^4 - 2\rho_1^2 \cos 2\psi_1} \end{aligned} \right. \quad (6)$$

式中, $A = \frac{\eta_s \tau_1^2 \tau_2^2}{\eta_0 T}$ 。

在(6)式中, 当反射率、透射率、折射率和消光系数给定后即可得到厚度值, 厚度现已不再是一个自变量。(6)式存在着无物理解、单物理解或多物理解三种情况。在无物理解的情形下, 说明所对应的折射率和消光系数在相应的反射率和透射率(测量值)下是无解的, 必须舍弃。在多解情形下, 则比较各个角度下(即不同的反射率和透射率)相对应的厚度值, 选取一个相互间相差最小的厚度解作为厚度解。利用(6)式即可将统计实验法的搜索范围从三维空间减少到二维平面。更进一步的是, 利用(6)式无物理解的条件可将最后的搜索范围限制在二维平面上的一个较小区域内。这样, 可基本上消除多解和误解的情况, 而搜索也可很快地收敛到总体极值点。求解单层吸收薄膜三个光学常数的条件优化算法是: 在二维 (n, k) 平面上的合理区域内取点, 计算相应厚度值和评价函数值, 比较评价函数值的大小, 当评价函数值足够小或已达最小值时得到的折射率、消光系数和厚度即为该薄膜的光学常数。本文

中评价函数定义为
$$\Delta E = \sqrt{\left[\sum_{j=1}^N \left((R_{mj} - R_{Dj})^2 + (T_{mj} - T_{Dj})^2 \right) \right]} / (N - 1)。$$

三、实例和讨论

实验中使用的样品是在DMDE-450镀膜机上用e型电子枪制备的, 基片均为楔角片。

DF透反仪被用来测量不同角度下p偏振光的反射率和透射率。由于基片楔角较大,测得的反射率值即为膜系的反射率,不需要进行校正;但测得的透射率值必须加上基片背面反射所损失的能量。表2中的透射率值都是经过校正的。

对单层介质膜,如五氧化二钽,三氧化二钽和三氧化二铝等,其消光系数均不大于0.01% (由于测量精度的限制),在如此小的消光系数情况下,在计算中忽略消光系数所引起的折射率和厚度的误差是非常小的(远远小于由测量误差引起的值)。因此,这些介质薄膜将作为完全非吸收薄膜来考虑。对每一种薄膜,测量了五个角度下的反射率值,任意组合其中的二个反射率进行计算,去除解中的非正确解,最后得到十个折射率值和十个物理厚度值,而它们的算术平均值 \bar{n} 和 \bar{d} 即为该薄膜的折射率和厚度解。从反射率误差值 $\Delta R = R_c - R_m$, (R_c 为从 \bar{n} , \bar{d} 算得的反射率, R_m 为测量值),可看出理论与实验吻合得很好(见表1)。折射率误差 $\Delta n/\bar{n}$ (Δn 为十个折射率之间最大差值的绝对值)对大部分光学薄膜的应用来说是足够小的。对所有的三种测量薄膜,虽然测量精度相同,厚度误差 $\Delta d/\bar{d}$ 却相差较大,这是因为反射率对厚度的偏导数正比于 $(\eta - \eta_0)$ 。当薄膜的折射率接近于基板折射率时,厚度变化对反射率的影响就变得很小了。三氧化二铝薄膜的厚度误差对某些应用来说是较大的。这是所有用强度测量值确定光学薄膜厚度方法所共有的局限性。

表1 单层介质薄膜的测量数据和计算结果

角度	10°	20°	25°	30°	35°	\bar{n}	$\Delta n/\bar{n}$	$\bar{d}(\text{nm})$	$\Delta d/\bar{d}$	
Ta ₂ O ₅	R_m	0.19368	0.18090	0.17076	0.51790	0.10128	2.0685	0.002	98.519	0.003
	$\Delta R(\times 10^{-4})$	0.412	-0.127	0.100	-0.035	0.574	$\Delta E = 0.363 \times 10^{-4}$, $n_s = 1.515$			
	角度	10°	15°	20°	30°	35°	\bar{n}	$\Delta n/\bar{n}$	$\bar{d}(\text{nm})$	$\Delta d/\bar{d}$
Gd ₂ O ₃	R_m	0.1375	0.1330	0.1264	0.1069	0.0937	1.8604	0.004	104.11	0.017
	$\Delta R(\times 10^{-4})$	0.210	-0.264	0.439	0.065	-0.017	$\Delta E = 0.279 \times 10^{-4}$, $n_s = 1.450$			
	角度	10°	25°	30°	40°	45°	\bar{n}	$\Delta n/\bar{n}$	$\bar{d}(\text{nm})$	$\Delta d/\bar{d}$
Al ₂ O ₃	R_m	0.06759	0.05488	0.04810	0.03079	0.02098	1.6213	0.001	115.14	0.031
	$\Delta R(\times 10^{-4})$	0.184	0.172	-0.304	-0.301	0.174	$\Delta E = 0.263 \times 10^{-4}$, $n_s = 1.515$			

对吸收薄膜,实验数据的最终拟合精度比介质薄膜的拟合精度低了一个数量级。这些误差可能来源于透射率的校正误差及未计入的散射损耗和吸收损耗。由于三个光学常数的误差 Δn 、 Δk 和 Δd 相互关联,直接从测量误差来讨论这三个量的大小是很困难的,我们可以从下面的定义式获得一个粗略的估计值:

$$\Delta n = \left[\left| \frac{\Delta R}{\partial R} \right|, \left| \frac{\Delta T}{\partial T} \right| \right]_{\max}, \quad \Delta k = \left[\left| \frac{\Delta R}{\partial k} \right|, \left| \frac{\Delta T}{\partial k} \right| \right]_{\max}, \quad \Delta d = \left[\left| \frac{\Delta R}{\partial d} \right|, \left| \frac{\Delta T}{\partial d} \right| \right]_{\max}, \quad (7)$$

式中, ΔR 和 ΔT 分别为反射率和透射率在测量值与计算拟合值之间的差,偏导数是用最终解处的偏差商来代替的。从这些值可看出最终解的误差是较小的。

计算中可发现大的角度测量范围对提高计数灵敏度是有利的。当薄膜厚度超过一定值后,计算灵敏度随着膜厚的增加而减小,而且当膜层太厚时,又会发生多解的情况。因此,这种方法不便于决定厚金属膜的光学常数。

表2 单层金属薄膜的测量数据和计算结果

角度	10°	15°	20°	25°	30°	35°	$n=1.2997$	$\Delta n=0.0665$
R_m	0.84748	0.84506	0.84140	0.83600	0.82942	0.82061	$k=6.7152$	$\Delta k=0.0169$
A1 T_m	0.02326	0.02361	0.02465	0.02575	0.02713	0.02906	$d=22.07368\text{nm}$	
$\Delta R(\times 10^{-4})$	3.058	0.297	-2.05	-2.095	-1.896	1.184	$\Delta d=0.081\text{nm}$	
$\Delta T(\times 10^{-4})$	0.734	2.635	0.050	-0.45	-0.683	-2.83	$\Delta E=2.641 \times 10^{-4}$	
角度	10°	15°	20°	25°	30°	35°	$n=0.0933$	$\Delta n=0.0053$
R_m	0.93160	0.93020	0.92820	0.92549	0.92178	0.91717	$k=4.5596$	$\Delta k=0.0075$
Ag T_m	0.04704	0.04800	0.04949	0.05141	0.05394	0.05694	$d=34.1422\text{nm}$	
$\Delta R(\times 10^{-4})$	-2.436	-2.195	-2.021	-1.416	1.696	5.228	$\Delta d=0.093\text{nm}$	
$\Delta T(\times 10^{-4})$	-0.390	0.092	-0.268	-0.020	-0.349	0.956	$\Delta E=3.109 \times 10^{-4}$	

* 两种膜系下的基板折射率均为1.515。

从以上的结果可看出由高精度的反射率和透射率测量值来准确地确定单层薄膜的光学常数是可行的。

作者对高伯龙教授给予的指导和更正表示衷心的感谢。

参 考 文 献

- [1] Nisson P O. Appl Opt, 1968, 7: 435~442
- [2] Denton R E, Campbell R D, Tomlin S G. J phys D, 1972, 5(4): 852~863
- [3] Hunderi O. Appl Opt, 1972, 11(7): 1572~1578
- [4] Hunter W R, Hass G. J O S A, 1974, 64(4): 429~433
- [5] Liddell H M. J Phys D, 1974, 7(11): 1588~1596
- [6] Amdt D P, Azzam R M A, Bennet J M *et al.* Appl Opt, 1984, 23(20): 3571~3596
- [7] Vriens L, Rippens W. Appl Opt, 1983, 22: 4105~4110
- [8] Amdt D P, Azzam M A, Bennett J M *et al.* Appl Opt, 1984, 23(20): 3571~3596
- [9] Palmer K F, Williams M Z. Appl Opt, 1985, 24(12): 1788~1806
- [10] Levêque G, Villachon-Rcnard Y. Appl Opt, 1990, 29: 3207~3212
- [11] Case W E. Appl Opt, 1983, 22: 1832~1836
- [12] Phillips R T. J Phys D, 1983, 16: 489~497
- [13] Chang Mojun, Gibson U J. Appl Opt, 1985, 24: 504~507
- [14] Epstein K A, Misemer D K, Vemstroom G D. Appl Opt, 1987, 26: 294~298
- [15] Tang J F, Zheng Q. J O S A, 1982, 72: 1522~1528
- [16] Gao Bolong. "Some useful applications of the equipment (DFTR-meter)," in Optical coatings-proceedings of international symposium, Tang Jinfa and Yan Yixun, Ed. (Optical Society of both China

固相混合薄膜的微结构和散射特性

胡晓东

(西南技术物理研究所, 成都)

摘要: 按适当比例制备的固相混合薄膜具有较低的散射损耗, 其微结构有所改善。得到透射电子显微镜 (TEM)、X衍射分析和角散射测量的证实。

Microstructure and the scattering properties of solid-phase mixed thin films

Hu Xiaodong

(Southwest Institute of Technical Physics)

Abstract: The solid-phase mixed (SPM) thin films with proper composition show the properties of reduction of optical scattering and improvement of microstructure. The effect is examined with transmission electron microscope (TME), X-ray diffraction analysis and angular scattering measurements.

一、引 言

随着近代光学的发展, 薄膜技术得到日益广泛的应用, 但同时也遇到许多困难。薄膜的性质不同于同种固体块材, 往往较之更差, 如散射损耗较大, 抗激光损伤阈值较低等等。薄膜性质是由结构所决定的。薄膜的微结构是具有很大内表面和空隙体积的柱状结构^[1]。为改善薄膜的性质最根本的办法是改善其结构。就此, 本文采用固相混合的方法获得几种固相混合膜, 运用透射电子显微镜 (TEM) 观察了这些薄膜表面和剖面的微结构; 做了X衍射分析; 通过角散射仪测试了薄膜的微分散射; 比较了烘烤对薄膜微结构和散射的影响。

二、实 验

1. 样品制备

将两种以上的固相材料按一定比例混合压制后在空气中烧结成块, 成为固相混合膜料, 用此蒸镀成的薄膜即为固相混合薄膜。用国产DMD-450型镀膜机, 直枪制备了十几种二元

and America, Shanghai, China, 1989), International Academic Pub, 1989; 237~240.

*

*

*

作者简介: 钟 钦, 男, 1962年9月出生。讲师, 博士。现从事光学薄膜研究工作。

收稿日期: 1992年1月13日。