材料、结构及工艺

DOI：10.16818/j.issn1001－5868.2021100601

界面粗糙度对真空紫外光学薄膜光谱性能影响研究

黄 凯[1,2]，郭 春[1*]，孔明东[1]

（1. 中国科学院光电技术研究所，成都 610209；2. 中国科学院大学 光电工程学院，北京 100049）

摘 要： 设计了193 nm窄角度和宽角度入射增透膜以及正入射高反膜，其中增透膜s和p偏振光透射率的最大偏差分别为0.17%和0.44%。结合标量散射理论和等效吸收层近似理论，多层膜间的粗糙界面等效为薄的吸收层，基于薄膜本征传输矩阵计算分析了不同界面粗糙度下的光谱性能。研究发现，薄膜光谱性能随着界面均方根粗糙度的增加而急剧退化，高反膜反射带宽也随之降低，达到4 nm时，宽角度入射增透膜和高反膜光谱性能在193 nm处分别退化2.04%和2.09%。界面粗糙度是影响高光谱性能真空紫外光学薄膜制备的重要因素。

关键词： 真空紫外光学薄膜；界面粗糙度；等效吸收层；增透膜；高反膜

中图分类号： O484.4 **文章编号：** 1001－5868(2023)02－0228－06

Research on the Effect of Interface Roughness on Spectral Properties of VUV Optical Thin Film

HUANG Kai[1,2], GUO Chun[1], KONG Mingdong[1]

(1. Institute of Optics and Electronics, Chinese Academy of Sciences, Chengdu 610209, CHN;
2. University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, CHN)

Abstract: Antireflection film with a narrow range of angle of incidence (AOI), antireflection film with a wide range of AOI, and multilayer high reflection thin film at 193 nm were designed respectively. The maximum deviations of the s and p polarized light transmittances of the antireflection film were 0.17% and 0.44%, respectively. Combining the scalar scattering theory and the equivalent absorption layer approximation theory, the rough interface between the multilayer film was equivalent to a thin absorption layer, and the spectral properties at different interface roughness were analyzed based on the thin film intrinsic transfer matrix. The results show that the spectral performance of the optical thin film decrease with the increase of the root mean square roughness of the interface and the reflection bandwidth of the high reflection film also decrease. When the root mean square roughness reaches 4 nm, the spectral performance of the antireflection film with a wide range of AOI and the multilayer high reflection film degrade by 2.04% and 2.09%, respectively. Interface roughness is the key factor affecting the preparation of VUV optical thin film with high spectral properties.

Key words: vacuum ultraviolet optical thin film; interface roughness; effective absorption layer; antireflection coatings; high reflection coatings

0 引言

紫外光源在光学系统的广泛使用，对其光学薄膜的质量要求逐步提高，为满足精密光学系统的超高技术需求，必须制备出高性能的真空紫外薄膜[1]。以典型的193 nm高数值孔径光刻投影光学系统为

收稿日期：2021－10－06.
基金项目：国家自然科学基金项目(61805247).
* **通信作者：**郭 春 **E-mail：**guochunyouxiang@126.com

例，它由 20～30 个大口径大陡度的光学元件组成，且大多为镀制减反射膜的透镜元件和高反射膜的镜面[2]。然而，不同光学介质之间存在的界面粗糙度将导致严重的散射损耗，影响多层薄膜的光学反射和透射性能[3]。此外，界面粗糙度引起的散射损耗与入射波长的平方成反比，波长越短，散射损耗越严重[4]。因此，在研究 193 nm 高性能增透膜和高反膜时，为获取接近 100%透过率或反射率的薄膜，除了考虑膜层材料的吸收损耗外，还需在理论上精确地分析界面粗糙度对薄膜系统光谱性能的影响。

在粗糙度对薄膜光学性能影响方面，Aspnes 等[5]通过光谱椭偏法对等效介质模型的表面粗糙度进行了研究，发现可以采用一层薄的均匀层来代替粗糙的界面。Carniglia[4]将标量散射理论扩展到多层薄膜系统，即考虑了一种新的模型，该模型假定给定膜层顶面的粗糙度是由先前沉积的膜层所引入的粗糙度和膜层本身厚度变化引起的，并给出了该模型下总积分散射以及镜面透过率和反射率变化公式。之后，Carniglia 将标量散射理论和均匀层模型进行对比分析，提出等效吸收层近似理论[6]，即采用一层具有特定吸收的薄层替代相邻介质间粗糙的界面，从而预测界面粗糙度导致的散射对薄膜光谱性能的影响。在此基础上，Singh 等[7]建立了偏振光作用下的均匀单层界面粗糙度模型，发现等效吸收层的消光系数正比于入射角度，入射角度对 s 偏振下的消光系数影响更大。国内，季一勤等[8]首先将界面粗糙度等效吸收层近似理论用于 532 nm 激光增透膜理论设计，并得到了存在界面层的增透膜修正设计结果。郭春等[9]在考虑折射率不均匀性的薄膜模型上进一步分析了粗糙表面对单层薄膜光谱特性的影响，将粗糙表面等效为薄的吸收层，采用分光光度法对该模型下的单层膜厚度、表面粗糙度和光学常数进行拟合确定，得到与其他技术途径实测值相吻合的结果，同时也证明该模型有望用于精确确定真空紫外波段单层膜光学薄膜的表面粗糙度、光学常数和厚度。当前，真空紫外多层膜光学性能受界面粗糙度的影响研究报道较少。本文分别设计了在 193 nm 波长处的多层增透膜和高反膜，考虑到许多具有凹或凸表面的光学元件被用于 193 nm 高数值孔径光学系统中，增透膜分窄角度(0°～30°)和宽角度(0°～60°)入射两类情况分别进行优化设计；高反膜则选用正入射设计。在上述设计的基础上，结合等效吸收层近似理论，构建了具备吸收特性的等效界面层来替代薄膜系统相邻膜层间的界面粗糙度，分析了界面粗糙度对真空紫外增透膜和高反膜的光谱特性的影响。

1　理想界面膜系设计

金属氟化物以其高的光学禁带宽度，使其成为真空紫外光学薄膜制备的首选薄料。论文选用 LaF_3[10-11] 和 MgF_2[12-13] 分别作为高和低折射率材料，并选取光学性能优异的 CaF_2[14] 作为基底材料进行膜系设计，薄膜高/低折射率材料和基底材料的折射率色散如图 1 所示。

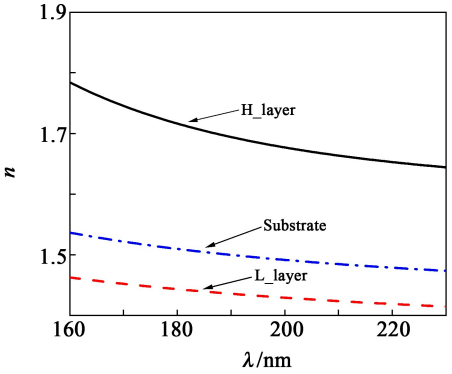
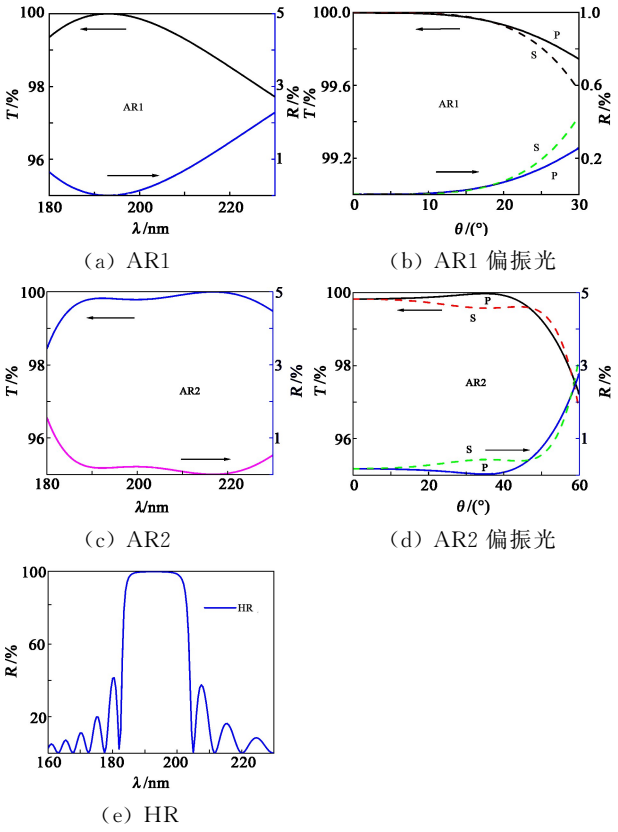


图 1　膜层和基底材料的折射率色散

以高数值孔径的 193 nm 投影光刻系统为例，该系统使用了数量较多的大口径大陡度球面光学元件，入射光照射到其表面不同位置时，光线以不同角度倾斜入射到薄膜表面，入射光将分为 s 偏振光和 p 偏振光，并具备不同的等效导纳，产生不同的反射和透射光谱。球面光学薄膜元件光谱性能随入射角度增加，偏振分离显著，必定会影响光学系统的性能。为此研究人员提出了减少宽入射角度下球面光学元件光谱偏振分离的膜系优化设计方案[15]。

本文中根据光学系统中球面光学元件的光线入射角度范围不同，分别设计了两类 193 nm 增透膜，第一类(AR1)：入射角度范围为 0°～30°内实现增透的窄角度入射增透膜，膜系结构为 Sub/LHL/Air；第二类(AR2)：入射角度范围为 0°～60°内实现增透的宽角度入射增透膜，对应膜系结构为 Sub/LHLHLHL/Air，其中“L”、“H”、“Sub”和“Air”分别为低折射率材料 MgF_2、高折射率材料 LaF_3、基底材料 CaF_2 和空气。通常，影响薄膜光谱性能的总损耗包括吸收和散射，论文中为了研究界面粗糙度对薄膜光学性能的影响，也即是散射损耗对薄膜光学性能的影响，理论设计中膜层和基底均设为无吸

收损耗材料。本小节给出的理想界面(膜系界面粗糙度为0)的增透膜设计目标为:在设定的入射角度范围内,193 nm波长透过率尽可能高,且对应各个入射角度下s偏振光和p偏振光光谱性能偏差尽可能小。采用Optilayer商用软件,完成的最终窄入射角和宽入射角度增透膜的膜层结构分别为:Sub/36.3 nmL 30.0 nmH32.5 nmL/Air和Sub/46.4 nmL 16.1 nmH 15.9 nmL 17.3 nmH 37.4 nmL 31.8 nmH 36.5 nmL/Air,相应的增透膜光学性能如图2所示。



(a) AR1 (b) AR1偏振光

(c) AR2 (d) AR2偏振光

(e) HR

图2 增透膜和高反膜的光谱曲线

图2(a)为理论上光线垂直入射时,窄角度入射增透膜(AR1)的光谱曲线图;图2(b)为0°～30°入射时193 nm波长处薄膜s偏振光和p偏振光的光谱曲线。通过优化膜系设计,很好地实现对193 nm波长处s偏振光和p偏振光光谱性能偏差控制,在入射角度为30°时,s偏振光和p偏振光的透射率分别为99.57%和99.74%,两者偏差0.17%。图2(c)为理论上光线垂直入射时,宽角度入射增透膜(AR2)的光谱曲线图,薄膜在190～220 nm范围内的透射率均大于99.78%;在0°～60°的入射范围内s和p偏振光的光谱数据如图2(d)所示,对应的宽入射角范围上,s和p偏振光的光谱性能偏差最大值小于0.44%。

与增透膜设计相比,高反膜的入射角单一,使得真空紫外高反膜(HR)设计较为简单。基本的膜系设计可采用对称结构或者非对称结构。由驻波场理论可知,为了提高高反膜的抗激光辐照能力,可在多层膜表面增加光学厚度为1/2波长的虚设层,虚设层通常为低折射率材料;也可采用非规整膜系设计,在保持高、低折射率材料光学厚度为1/2波长的同时,增加低折射率材料厚度。上述设计均基于,低折射率材料的抗激光辐照能力强于高折射率材料[16]。论文中高反膜设计,采用外加虚设层的规整的对称结构膜系设计:Sub/L $(HL)_x$ H 2L/Air,其中 x 为膜堆数。在理想情况下,x 足够大时,中心波长193 nm的峰值反射率可以达到99.8%,过多的膜堆数,不能提高峰值反射率和增大高反射带带宽,反而在实际情况中会带来更多的吸收和散射损耗,且膜系厚度增加也会影响光学元件面形。因此,x 取值为21,其反射光谱曲线如图2(e)所示。

2 等效吸收层模型

标量散射理论中,界面粗糙度通过光的散射降低薄膜的反射率和透射率。而后Carniglia建立了等效吸收层近似理论,以薄的均匀吸收层等效模拟粗糙界面对膜系的光学性能影响。以三层窄角度入射增透膜为例,在基底—低折射率膜层、低折射率膜层—高折射率膜层和低折射率膜层—空气的4个界面引入等效吸收层,用于模拟上述4个界面的粗糙度对窄角度入射增透膜光学性能的影响,对应的薄膜结构模型如图3所示。

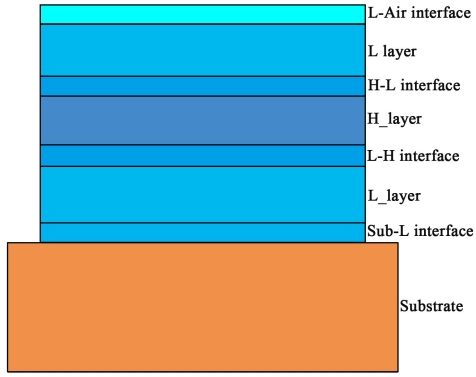


图3 带等效吸收层的窄角度入射增透膜结构模型

光线垂直入射时,相邻膜层介质间粗糙的界面等效为一层薄的吸收层,该等效薄层的特征矩阵为:

$$\boldsymbol{M}=\begin{bmatrix}\cos\delta & \frac{\mathrm{i}}{N}\sin\delta\\ \mathrm{i}N\sin\delta & \cos\delta\end{bmatrix} \tag{1}$$

式中，δ 为该薄层的相位厚度，$\delta=\frac{2\pi Nd}{\lambda}$。该等效吸收层的复折射率为：

$$N=n-\mathrm{i}k \tag{2}$$

薄层厚度 d，以及消光系数 k 分别为[6]：

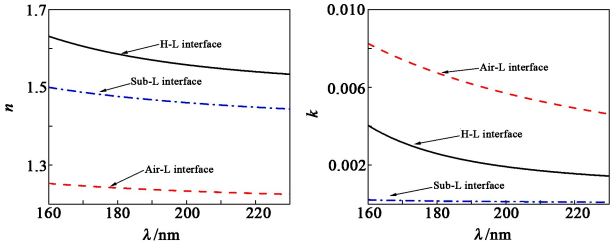
$$d=2\sigma \tag{3}$$

$$k=\frac{\pi(n_1-n_2)^2(n_1+n_2)}{4n}\cdot\frac{d}{\lambda} \tag{4}$$

根据 Drude 等效介质近似理论[17]，薄层的折射率可表示为：

$$n=\sqrt{\frac{n_1^2+n_2^2}{2}} \tag{5}$$

式中，σ，λ，n_1 和 n_2 分别代表界面均方根粗糙度、入射光波长以及相邻介质的折射率。假设多层膜界面均方根粗糙度 σ 为 2 nm，通过式(4)和(5)可计算出对应多层膜中各个界面处等效吸收层的折射率和消光系数色散情况，结果如图 4 所示。一旦明确了多层膜中各个界面处的等效吸收层光学传输矩阵，结合多层膜本征光学传输矩阵就可以开展界面粗糙度对多层膜光谱性能影响的理论分析[18]。



(a) 折射率　　(b) 消光系数

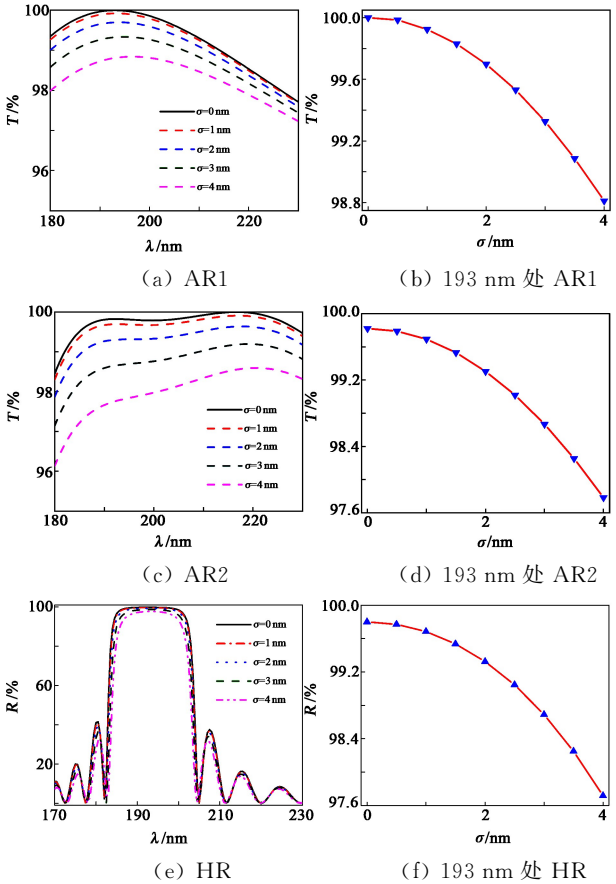
图 4　多层膜等效吸收界面层的光学常数

3　界面粗糙度对薄膜光谱性能影响

根据前述的等效吸收层理论，假定多层薄膜系统中各界面处均方根粗糙度一致，且相关长度 l 远大于工作波长 $\lambda=193$ nm，并依次对 σ 取值 0，1，2，3，4 nm，令其远小于工作波长，理论计算获得窄角度入射增透膜、宽角度入射增透膜和高反膜的光谱曲线，分别如图 5(a)、(c)和(e)所示。

从图 5(a)和(c)可以看出，随着膜层中各界面处均方根粗糙度增加，两类增透膜的整体透射率均明显下降。并且波长越短，透过率退化越显著。这是因为给定界面粗糙度后，波长越短对应的等效吸收层的消光系数越大，如图 4(b)所示。对高反膜而言，随着界面粗糙度增加，高反膜的峰值反射率和峰值半高宽均急剧下降。

为说明界面粗糙度对于真空紫外薄膜光谱性能的影响，本文还对三类多层膜在 193 nm 处界面粗糙度对光谱性能的影响做进一步统计分析，结果如图 5(b)、(d)和(f)所示。从图 5(b)可见，对窄角度入射增透膜而言，当界面均方根粗糙度数值取 4 nm 时，在 193 nm 处的透射率为 98.81%，对应的透过率下降为 1.19%。对宽角度入射增透膜而言，界面均方根粗糙度数值分别取 0 和 4 nm 时，在 193 nm 波长处的透射率分别为 99.82%和 97.78%，相应的透过率退化高达 2.04%，如图 5(d)所示。显然，在相同界面粗糙度的条件下，界面粗糙度导致的宽角度入射增透膜光谱性能退化明显比窄角度入射增透膜的影响严重。这是因为宽角度入射增透膜拥有更多的膜层，包含更多的粗糙界面层，造成较多的散射损耗，因此在真空紫外薄膜的设计中，兼顾膜层吸收和散射损耗，择优选取合适的膜层层数可以有效地提高增透膜光谱性能。



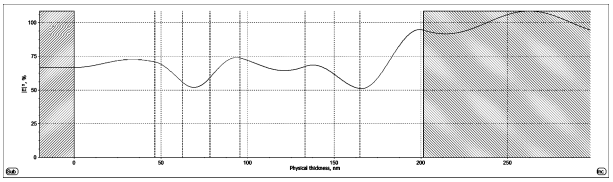
(a) AR1　　(b) 193 nm 处 AR1

(c) AR2　　(d) 193 nm 处 AR2

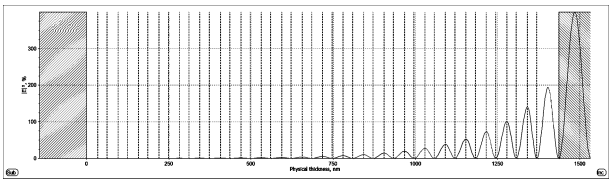
(e) HR　　(f) 193 nm 处 HR

图 5　界面粗糙度对薄膜光谱性能的影响

高反膜在 193 nm 波长的反射率随着界面粗糙度增加的变化曲线如图 5(f)所示，当界面均方根粗糙度数值分别取 0 和 4 nm 时，在 193 nm 波长处的反射率分别为 99.8%和 97.71%，相应的反射率下降为 2.09%。对比图 5(d)可以发现，高反膜拥有更多的界面层，却和宽角度入射增透膜的光谱退化幅度大致相同，该现象与多层膜中驻波电场强度分布有关，一般来说，电场强度愈大的膜层或界面，其散射损耗愈大。对应正入射角下，宽角度入射增透膜和高反膜在 193 nm 波长的驻波电场强度分布，如图 6 所示，相比于宽角度入射增透膜，多层高反膜的驻波电场强度则主要分布在最外几层薄膜中。



(a) AR2



(b) HR

图 6 193 nm 处多层膜驻波电场强度分布图

4 结论

分别设计了 193 nm 波长处窄角度入射和宽角度入射两类增透膜，以及 193 nm 中心波长高反膜；根据等效吸收层理论，将薄膜系统中的粗糙界面等效为一层薄的吸收层，结合标量散射理论，利用消光系数和薄层厚度来解释界面粗糙度引起的散射对薄膜光谱性能的影响。研究结果表明，真空紫外薄膜的光谱性能随着界面均方根粗糙度的增加而显著下降。界面粗糙度越大，光谱性能越差。对增透膜而言，膜层越多所带来的光学散射损耗越严重，膜系设计时应尽量避免较多的膜层。研究证实了界面粗糙度仍是影响真空紫外薄膜光谱性能的主要因素，通过降低界面粗糙度是提高真空紫外薄膜光谱性能的有效技术途径。

参考文献：

[1] Zhang Lichao, Cai Xikun. High Performance Fluoride Optical Coatings for DUV Cptics[C]// 7th Inter. Symp. on Advanced Optical Manufacturing and Testing Technologies: Advanced Optical Manufacturing Technologies, 2014: 26-29.

[2] Zaczek C, Mullender S, Enkisch H, et al. Coatings for Next Generation Lithography [J]. Proc. SPIE, 2008, 7101: 71010X.

[3] Nichelatti E, Montecchi M, Montereali R M. Optical reflectance and transmittance of a multilayer coating affected by refractive-index inhomogeneity, interface roughness, and thickness wedge[J]. J. of Non-Crystalline Solids, 2009, 355 (18/21): 1115-1118.

[4] Carniglia C K. Scalar scattering theory for multilayer optical coatings[J]. Optical Engineering, 1979, 18(2): 104-115.

[5] Aspnes D E, Theeten J B. Investigation of effective-medium models of microscopic surface roughness by spectroscopic ellipsometry[J]. Phys. Rev. B, 1979, 20(8): 3292-3302.

[6] Carniglia C K, Jensen D G. Single layer model for surface roughness[J]. Appl. Opt., 2002, 41(16): 3167-3171.

[7] Singh U, Kapoor A. Single layer homogeneous model for surface roughness by polarized light scattering[J]. Opt. and Laser Technol., 2008, 40(2): 315-324.

[8] 季一勤，刘华松，王占山，等. 界面层对激光减反膜的影响研究[J]. 红外与激光工程，2011，40(10)：2003-2007，2027.
Ji Yiqing, Liu Huasong, Wang Zhanshan, et al. Influence of interface layer on antireflection coating for laser optics [J]. Infrared and Laser Engineering, 2011, 40(10): 2003-2007, 2027.

[9] Guo C, Kong M, Gao W, et al. Simultaneous determination of optical constants, thickness, and surface roughness of thin film from spectrophotometric measurements[J]. Opt. Lett., 2013, 38(1): 40-42.

[10] Liu G, Yu H, Zhang W, et al. Comparison study of microstructure, chemical composition and optical properties between resistive heating and electron beam evaporated Laf3 thin films[J]. Thin Solid Films, 2011, 519(11): 3487-3491.

[11] Bischoff M, Gaebler D, Kaiser N, et al. Optical and structural properties of Laf3 thin films [J]. Appl. Opt., 2008, 47(13): C157-C161.

[12] Guo C, Kong M D, Lin D W, et al. Microstructure related properties of magnesium fluoride films at 193 nm by oblique-angle deposition[J]. Opt. Express, 2013, 21(1): 960-967.

[13] Liu M C, Lee C C, Liao B H, et al. Fluoride antireflection coatings deposited at 193 nm [J]. Appl. Opt., 2008, 47 (13): C214-C218.

[14] 薛春荣，易 葵，魏朝阳，等. 真空紫外到深紫外波段基底材料的光学特性[J]. 强激光与粒子束，2009，21(2)：287-290.
Xue Chunrong, Yi Kui, Wei Chaoyang, et al. Optical properties of vacuum ultraviolet and deep ultraviolet region substrate materials[J]. High Power Laser and Particle Beams, 2009, 21(2): 287-290.

[15] Kelkar P, Tirri B, Wilklow R, et al. Deposition and

Characterization of Challenging DUV Coatings[J]. Proc. SPIE, 2008, 7067: 706708.

[16] 常艳贺，金春水，李　春，等. Arf准分子激光对氟化物高反射薄膜的诱导损伤[J]. 激光技术，2014，38(3)：302-306.
Chang Yanhe, Jin Chunshui, Li Chun, et al. Arf excimer laser induced damage on high reflective fluoride film[J]. Laser Technol., 2014, 38(3): 302-306.

[17] Carniglia C, Jensen D, Clarke G. The equivalence between surface roughness and a homogeneous layer on the surface [C]// Proc. of the OSA Annual Meeting Providence, 2001: 22-26.

[18] 唐晋发，顾培夫，刘　旭，等. 现代光学薄膜技术[M]. 杭州：浙江大学出版社，2006：24-33.
Tang Jinfa, Gu Peifu, Liu Xu, at al. Modern Optical Thin Film Technology[M]. Hangzhou: Zhejiang University Press, 2006: 24-33.

作者简介：

黄　凯(1995—)，男，硕士研究生，主要研究方向为光学薄膜的制备与表征技术；

郭　春(1986—)，男，河南省信阳市人，博士，副研究员，主要研究方向为薄膜光学技术，包括真空紫外/深紫外光学薄膜、激光薄膜和激光通信薄膜的制备和性能检测分析；

孔明东(1973—)，男，四川省成都市人，博士，副研究员，主要研究方向为光学薄膜的设计、镀膜工艺、性能测试分析。