

文章编号: 0258-7025(2006)07-0959-04

强吸收衬底上薄膜厚度和折射率的 测量新方法

张 竞, 曹庄琪, 陆海峰, 李红根, 沈启舜

(上海交通大学物理系, 上海 200240)

摘要 提出了一种同时测量强吸收衬底上薄膜厚度和折射率的方法。对生长于强吸收衬底上的透明薄膜, 提出在该薄膜上镀一层薄金属, 形成金属-薄膜-强吸收衬底的类波导结构。由于小角度入射光在强吸收衬底上具有较强的反射率, 使该结构可容纳一系列共振模。利用自由空间耦合技术和导出的共振模模式本征方程, 同时确定透明薄膜的厚度和折射率。实验中测量了硅衬底上制备的聚甲基丙烯酸甲酯(PMMA)薄膜的折射率和厚度, 测量的相对误差均小于 10^{-3} 。该方法具有简便、可靠、可测量任意折射率薄膜的优点。

关键词 薄膜; 膜厚; 折射率; 类波导结构; 强吸收衬底; 自由空间耦合

中图分类号 O 484.5 **文献标识码** A

New Measurement Method of Thickness and Refractive Index of the Film Grown on the Strong Absorption Substrate

ZHANG Jing, CAO Zhuang-qi, LU Hai-feng, LI Hong-geng, SHEN Qi-shun

(Department of Physics, Shanghai Jiaotong University, Shanghai 200240, China)

Abstract A measurement method of thickness and refractive index of film grown on the strong absorption substrate is proposed. A thin metal layer is deposited on a transparent film which is grown on a strong absorption substrate. As a result, an analogue waveguide configuration of metal-transparent film-absorption substrate, which can accommodate a series of resonant modes, is formed due to a bigger reflectivity on the absorption substrate for the small angle of incidence. Based on the free-space coupling technique and the eigenvalue equation of the resonant modes derived by the standard electromagnetic field theory, the thickness and refractive index of the transparent film are simultaneously determined with a relative error of 1×10^{-3} . The proposed method is simple and reliable, and can be used for the film with different refractive indexes.

Key words thin films; thickness; refractivity; analogue waveguide configuration; strong absorption substrate; free-space couple

1 引 言

椭圆偏振法能同时测量硅衬底上薄膜厚度和折射率, 具有很高的测量灵敏度和精度^[1], 但是由于影响测量准确度因素很多, 特别是当薄膜折射率与基底折射率相接近时, 用椭偏仪同时测量薄膜的厚度和折射率与实际情况有较大偏差。此外, 椭圆偏振法存在一个膜厚周期, 在一个膜厚周期内, 椭偏法测

量膜厚有确定值, 若待测膜厚超过一个周期, 膜厚有多个不确定值。而且这种方法必须事先制好曲线和数据表, 需要使用者自己计算, 繁琐而不够灵活。

本文提出在硅基薄膜上镀一薄金属层, 形成金属-薄膜-强吸收衬底的结构。由于当光从金属表面以小角度入射时, 进入薄膜的光在强吸收衬底上具有一定的反射率, 而反射光经过薄膜后在薄膜-衬底

收稿日期: 2005-10-12; 收到修改稿日期: 2005-12-28

基金项目: 国家自然科学基金(60237010)资助项目。

作者简介: 张 竞(1981—), 女, 四川人, 上海交通大学硕士研究生, 主要从事光波导器件的研究。E-mail: xbz15@sjtu.edu.cn

导师简介: 曹庄琪(1945—), 男, 上海人, 上海交通大学教授, 博士生导师, 主要从事导波光器件的研究。E-mail: zqcao@

界面又产生强反射,于是金属-薄膜-强吸收衬底形成一类泄漏波导结构。利用自由空间耦合技术,由衰减全反射(ATR)实验可测得一系列共振吸收峰的位置,再利用这种类波导的模式本征方程和最小二乘法拟合,可以同时得到精确的薄膜厚度和折射率。该方法具有折射率测量范围大,容许利用不透明的强吸收衬底,测量精度高。

2 测量原理

一般的全介质平面波导,可采用棱镜耦合,确定导波层的折射率和厚度。对于强吸收介质衬底上的薄膜,在薄膜表面镀一层薄金属膜,形成如图 1 所示的金属-薄膜-强吸收衬底的类波导结构,其中 r 表示实部, i 表示虚部。

通过分析和数值模拟发现:1) 当可见光以小角度入射时,在一些高折射率、强吸收的材料上具有较强的反射率,而且折射率和吸收越大,反射也越强;几种半导体材料在 650 nm 波长下的表面反射率如表 1 所示^[2],介电常数表示为 $\epsilon = \epsilon_1 + i\epsilon_2$, R 为小角度下的反射率。2) 这种结构不满足一般波导要求薄膜层的折射率 n_2 大于衬底折射率 n_3 的条件,称为类波导。它对中间薄膜层折射率没有任何要求,明显扩大了薄膜折射率的测量范围。在这种结构中,尽管衬底吸收很强,其折射率可大于薄膜折射率,但由

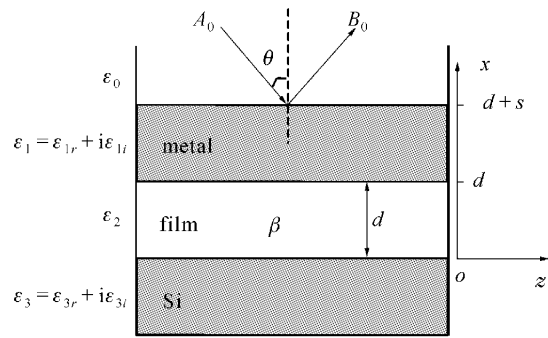


图 1 强吸收衬底金属包覆类波导结构

Fig. 1 Analogue waveguide configuration of metal cladding-film-substrate with strong absorption

于衬底中的场为指数衰减调制的振荡场,衬底介电常数虚部越大,衰减越快,振荡越弱,因此衬底中主要体现为指数衰减场。另一方面,单面包覆的金属增强了薄膜上表面的反射,光被限制在薄膜中传输。图 2 为增加金属层后共振模调制深度增大和半峰宽减小的模拟曲线,探测灵敏度和精度大大提高。由于衬底的强吸收特性,这种结构的传输损耗很大,但利用这种特殊的反射型结构所形成的共振模,可以进行薄膜参数的精确测量。3) 由于这种结构的薄膜中光线的入射角不受任何限制,衬底中始终是指数衰减调制的振荡场,因此其共振模的有效折射率 n 的取值范围为 $0 < n < n_2$, 在此条件下可采用自由空间耦合技术^[3]。

表 1 半导体材料的介电常数与表面反射率

Table 1 Reflectivity versus permittivity of semiconductors with $\lambda=650 \text{ nm}$ and $\theta=5^\circ$

Material	Si	Ge	GaAs	GaSb	InP	InAs	InSb
ϵ_1	14.797	27.62	14.607	24.836	12.284	15.015	16.144
ϵ_2	0.126	6.761	1.369	8.373	2.062	4.481	16.603
R	0.345	0.471	0.344	0.458	0.313	0.36	0.463

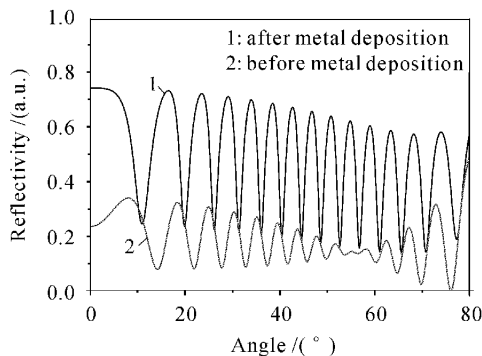


图 2 增加金属层后的共振模比较图

Fig. 2 Comparison chart of resonated modes with metal deposition

考虑图 1 所示的类波导结构,对符号的下标 3, 2, 1, 0 分别规定代表强吸收衬底、薄膜、金属层和空气中的物理量。

以 TE 波为例,各个区域中的电场分布为

$$E_y(x) = \begin{cases} A_0 e^{-i\kappa_0(x-d-s)} + B_0 e^{i\kappa_0(x-d-s)} \\ A_1 e^{\alpha_1(x-d)} + B_0 e^{-\alpha_1(x-d)} \\ A_2 e^{-i\kappa_2 x} + B_2 e^{i\kappa_2 x} \\ A_3 e^{\alpha_3 x} \end{cases}, \quad (1)$$

其中 $\kappa_0 = \sqrt{k_0^2 \epsilon_0 - \beta^2}$, $\alpha_1 = \sqrt{\beta^2 - k_0^2 \epsilon_1}$, $\kappa_2 = \sqrt{k_0^2 \epsilon_2 - \beta^2}$, $\alpha_3 = \sqrt{\beta^2 - k_0^2 \epsilon_3}$, $\beta = k_0 n_0 \sin \theta_m$ 为共振模的传播常数, $k_0 = 2\pi/\lambda$ 为自由空间波数, λ 为真空

中的波长, θ 为由空气层射向金属上表面的光线入射角, $n_0 = 1$ 。

由边界条件可得金属表面的反射系数

$$r = \frac{B_0}{A_0} = \frac{e^{-i2\Phi_{01}} + r_{123} e^{-2\alpha_1 s}}{1 + r_{123} e^{-i2\Phi_{01}} e^{-2\alpha_1 s}},$$

$$\text{其中 } r_{123} = \frac{e^{-i2\Phi_{21}} - e^{i2(k_2 d - \Phi_{23})}}{e^{i2(k_2 d - \Phi_{21} - \Phi_{23})} - 1}, \Phi_{01} = \arctan\left(\frac{\alpha_1}{\kappa_0}\right), \Phi_{21}$$

$$= \arctan\left(\frac{\alpha_1}{\kappa_2}\right), \Phi_{23} = \arctan\left(\frac{\alpha_3}{\kappa_2}\right).$$

当 $A_0 = 0$ 时, 可得此结构的色散方程为

$$e^{i2(\kappa_2 d - \Phi_{23} - \Phi_{21})} - 1 = [e^{i2(\kappa_2 d - \Phi_{23})} - e^{-i2\Phi_{21}}] \times e^{-i2\Phi_{01}} e^{-2\alpha_1 s}. \quad (2)$$

显然, 当 $s \rightarrow \infty$ 时 $e^{-2\alpha_1 s} \rightarrow 0$, 方程(2)退化为三层波导的色散方程; 当 s 有限时, 方程(2)是一个四层泄漏波导的色散方程; 在金属层较厚时(30 nm 以上), 有 $e^{-2\alpha_1 s} \ll 1$, 因此有 $e^{i2(\kappa_2 d - \Phi_{23} - \Phi_{21})} \approx 1$, 即 $[e^{i2(\kappa_2 d - \Phi_{23})} - e^{-i2\Phi_{21}}] \approx i2\sin(2\Phi_{21})$, 于是

$$e^{i2(\kappa_2 d - \Phi_{23} - \Phi_{21})} - 1 \approx i2\sin(2\Phi_{21}) e^{-i2\Phi_{01}} e^{-2\alpha_1 s}, \quad (3)$$

方程(3)可简化成

$$\kappa_2 d = m\pi + \Phi_{23} + \Phi_{21} + \sin(2\Phi_{21}) e^{-i2\Phi_{01}} e^{-2\alpha_1 s}, \quad (4)$$

可以看出, 该结构与三层平板波导的色散方程差一个修正项。其中 $\Phi_{01} = \arctan\left(\frac{\epsilon_0}{\epsilon_1} \frac{\alpha_1}{\kappa_0}\right)$, $\Phi_{21} =$

$$\arctan\left(\frac{\epsilon_2}{\epsilon_1} \frac{\alpha_1}{\kappa_2}\right), \Phi_{23} = \arctan\left(\frac{\epsilon_2}{\epsilon_3} \frac{\alpha_3}{\kappa_2}\right).$$

同理, 可以得到 TM 波的色散方程, 同(4)式。

利用自由空间耦合技术可得到三个共振模的角度位置 $\theta_{m-1}, \theta_m, \theta_{m+1}$, 进而求得传播常数 $\beta_{m-1}, \beta_m, \beta_{m+1}$, 代入(4)式就可以求得 m, d 和 n_2 的初值, 再用最小二乘法进一步拟合得到更精确的结果。

3 样品制备和实验测量

将双面抛光的 n 型单晶硅片(厚 0.38 ~ 0.39 mm, 2 cm × 2 cm)用丙酮溶液超声清洗干净, 烘干, 作为衬底。利用观测反射谱^[4]的方法测得其在 $\lambda = 650$ nm 下的介电系数为 $\epsilon_3 = 12.7 + i5.5$ 。配制聚甲基丙烯酸甲脂(PMMA)溶液(10%, 20% 各一瓶, 溶解在 1.105 ~ 1.109 g/mL 的一氯代苯溶液中), 用自旋涂覆法均匀地涂在硅衬底上, 按照不同的转速, 制作 3 块不同厚度的薄膜样品。然后将样品置于溅射机中, 为防止金粒子渗入有机膜, 采用小功率溅射, 在有机膜表面镀一层薄金膜。设其厚度为 s , 介电常数为 ϵ_1 , 可利用陪片经双波长法^[5], 在

650 nm 波长下测得 $s = 12.7$ nm, $\epsilon_1 = -11.2 + 1.5i$, 所得的介电系数结果与文献[6, 7]给出的结果十分接近。

实验装置如图 3 所示, 光源为带准直器的半导体激光器 ($\lambda = 650$ nm, 发散角小于 1 mrad), 经过起偏器后变成偏振光, 直接射向样品表面, 样品放在 $\theta/2\theta$ 仪上, 探测器放在 2θ 转盘上, 保证探测器时刻跟踪反射光。样品的扫描通过步进电动机驱动, 最小步长角度为 1.1×10^{-5} rad。为了得到较为精密的数据, 用计算机控制步进电动机的转动, 探测器接收的信号放大后经过 A/D 转换卡进入计算机, 在屏幕上得到角度扫描的衰减全反射曲线, x 方向表示角度, y 方向表示反射光强。

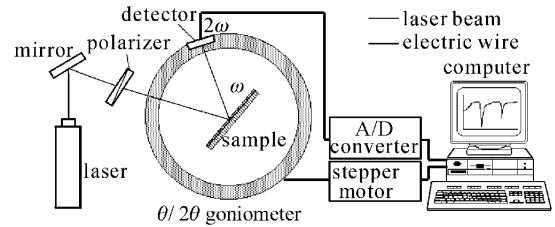


图 3 测量薄膜参数实验装置图

Fig. 3 Experimental setup

利用自由空间耦合技术得到三个导模的传播常数, 代入方程(4), 联立三组方程求解可同时求得 m, d 和 n_2 ((4) 式中, $\kappa_2 = \sqrt{\kappa_0^2 \epsilon_2 - \beta^2}$, $\epsilon_2 = n_2^2$), 代表性样品的测量结果如表 2 所示。实验扫描 TM 曲线与衰减全反射模拟软件得到的曲线拟合得很好, 如图 4 所示。

表 2 n 型硅衬底上聚甲基丙烯酸甲酯膜光学常数的测量结果

Table 2 Measurement results of optical constants of PMMA film on n -Si substrate

Wavelength / nm	m	$d / \mu\text{m}$	n_2
650	52	11.768	1.474 ± 0.001

实验中的误差主要由三部分构成: 步进电动机带动的 $\theta/2\theta$ 转角仪产生的角度测量误差, 金属和衬底参数的测量误差以及角度原点的判断误差。

步进电动机每一步转动的角度为 1.1×10^{-5} rad, 若以此为误差, 则有效折射率 $n = \sin\theta$ 的测量误差为

$$\Delta n = \cos\theta \Delta\theta = 0.5 \times 1.1 \times 10^{-5} = 0.55 \times 10^{-5}, \quad (5)$$

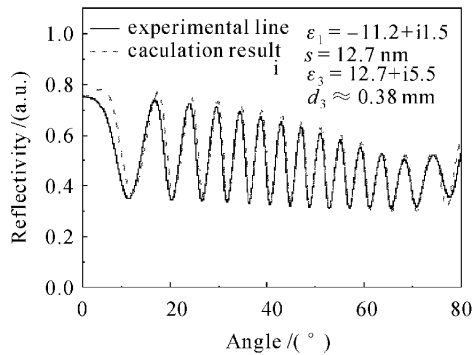


图 4 计算结果与实验曲线的拟合

Fig. 4 Calculation result and TM mode line of reflectivity versus incident angle

Δn_2 与 Δn 基本相等^[8], 即有 $\frac{\Delta n_2}{n_2} \approx \frac{\Delta n}{n_2} = 0.4 \times 10^{-5}$ 。

再考虑厚度测量的相对误差, 由色散方程可得

$$\frac{\Delta d}{d_{\text{eff}}} = \frac{n}{n_1^2 - n^2} \Delta n \approx 0.5 \times 10^{-6}, \quad (6)$$

由于在金属和强吸收衬底中光的穿透深度极小, 用 d_{eff} 代替 d 将不会引起大的误差变化。

根据理论模拟, 如果金属膜介电常数实部和虚部分别产生 1 的较大变化时, 两者引起的角度位移均小于 1.7×10^{-4} rad。若设入射角为 $\theta = 60^\circ$, 则金属层的参数变化给结果带来的误差大约为 $\Delta n = \cos\theta \Delta\theta = 0.85 \times 10^{-4}$ 。由式(5), (6) 可知 $\Delta n_2/n_2 \approx 0.58 \times 10^{-4}$, $\Delta d/d \approx 0.7 \times 10^{-5}$ 。

由于实验中的硅衬底较厚, 所以衬底的介电常数对共振峰最低点的角度位置影响更弱。根据理论模拟, 硅衬底介电常数的实部和虚部分别产生 1 的较大变化时, 两者引起的角度位移大约 1.7×10^{-5} rad, 则衬底参数变化给结果带来的误差也小于 10^{-4} 。再考虑角度原点的判断误差来自于光路的自准直确定, 误差约为 $0.5/1000$ rad。综合所

有误差, 估计折射率和厚度的测量的相对误差在 10^{-3} 。实际测量的膜厚范围可达到 $3 \sim 100 \mu\text{m}$, 而对薄膜折射率则没有限制。

4 结 论

提出了一种与传统 m-line 方法不同的测量强吸收衬底上薄膜参数的新方法, 该方法具有薄膜厚度和折射率可以同时测量, 折射率测量范围没有限制, 可用于强吸收材料上的薄膜测量等优点。该方法简单方便, 稳定可靠, 预计会在半导体材料领域有广阔的应用前景。但该方法不能测量厚度较小的薄膜。

参 考 文 献

- Huang Zuohua, He Zhenjiang. The optical methods for measuring the thickness and refractive index of thin films [J]. *Modern Scientific Instruments*, 2003, 4:42~44
- 黄佐华, 何振江. 测量薄膜厚度及折射率的光学方法[J]. 现代科学仪器, 2003, 4:42~44
- D. E. Aspnes, A. A. Studna. Dielectric functions and optical parameters of Si, Ge, GaP, GaAs, GaSb, InP, InAs, and InSb from 1.5 to 6.0 eV [J]. *Phys. Rev. B*, 1983, 27(2):985~1004
- Honggen Li, Zhuangqi Cao, Haifeng Lu *et al.*. Free-space coupling of a light beam into a symmetrical metal-cladding optical waveguide [J]. *Appl. Phys. Lett.*, 2003, 83(14):2757~2759
- Shen Xuechu. *Semiconductor Spectra and Optical Properties* [M]. 2nd edition. Beijing: Science Press, 2002
- 沈学础. 半导体光谱和光学性质[M]. 第二版. 北京: 科学出版社, 2002
- W. P. Chen, J. M. Chen. Use of surface plasma waves for determination of the thickness and optical constants of thin metallic films [J]. *J. Opt. Soc. Am.*, 1981, 71(2):189~191
- L. G. Schulz, F. R. Tancherlini. Optical constants of silver, gold, copper, and aluminum. II. The index of refraction n [J]. *J. Opt. Soc. Am.*, 1954, 44(5):362~368
- L. G. Schulz. Optical constants of silver, gold, copper, and aluminum. I. The absorption coefficient k [J]. *J. Opt. Soc. Am.*, 1954, 44(5):357~362
- Yi Jiang, Zhuangqi Cao, Qishun Shen *et al.*. Improved attenuated-total-reflection technique for measuring the electro-optic coefficients of nonlinear optical polymers [J]. *J. Opt. Soc. Am. B*, 2000, 17(5):805~808