

基于椭偏成像光路和表面等离子体共振效应的金属薄膜参数测量方法研究

胡仕玉^{1,2} 曾爱军^{1,2} 谷利元^{1,2} 黄惠杰^{1,2} 胡国行^{1,2} 贺洪波^{1,2}

¹中国科学院上海光学精密机械研究所, 上海 201800

²中国科学院大学, 北京 100049

摘要 提出了一种基于椭偏成像光路和表面等离子体共振效应的金属薄膜参数测量方法,在椭偏成像光路中采用p偏振光在金属薄膜与空气界面产生表面等离子体共振效应,利用不产生表面等离子体共振效应的s偏振光消除背景光的影响,得到表面等离子体共振吸收环垂直方向的归一化反射率曲线,数值拟合获得待测金属薄膜的薄膜参数,这种方法不要求解椭偏方程,数据处理过程简单,求解速度快。实验中,基于该方法的测量结果与标准椭偏仪的测量结果基本一致,很好地验证了该方法的有效性。

关键词 测量; 金属薄膜参数; 表面等离子体共振效应; 椭偏成像光路

中图分类号 O439

文献标识码 A

doi: 10.3788/CJL201542.1108001

Measurement Method of Film Parameters of Metal Based on Imaging Ellipsometry and Surface-Plasmon Resonance

Hu Shiyu^{1,2} Zeng Aijun^{1,2} Gu Liyuan^{1,2} Huang Huijie^{1,2} Hu Guohang^{1,2} He Hongbo^{1,2}

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

²University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China

Abstract A measurement method of film parameters of metal based on imaging ellipsometry and surface-plasmon resonance is presented. p polarized light is applied to generate surface-plasmon resonance effect at the interface of metal film and air in layout of imaging ellipsometry. The influence of back light is avoided by s polarized light which can't lead to surface-plasmon resonance effect. Then the normalized reflectance profile along the perpendicular direction of absorption ring of surface-plasmon resonance is obtained. We measure metal film parameters by numerical fitting the reflectance profile along long axis of the elliptical fringe. This method is not necessary to solve the transcendental equation and data processing is simple and fast. The experimental result with this method is coincident with that of standard ellipsometer, which verifies the validity of this measurement method.

Key words measurement; film parameters of metal; surface-plasmon resonance; imaging ellipsometry

OCIS codes 310.6860; 240.6680; 120.2130; 170.0110

1 引言

随着微纳技术的快速发展,薄膜应用领域越来越广,如半导体技术、光谱学纳米光子学和光学等方面,确定薄膜参数对于薄膜特性研究具有重要意义,而椭偏测量技术是测量薄膜参数最有效的方法之一,它具有非破坏性、非接触性以及高的测量精度等诸多优点^[1-4]。在椭偏测量技术中,椭偏方程描述了椭偏参数(Δ 、 Ψ)与薄膜参数(折射率 n 、消光系数 k 和厚度 d)之间的关系式,但是该关系式包含非线性超越等式,因此

收稿日期: 2015-05-04; 收到修改稿日期: 2015-07-16

基金项目: 国家国际科技合作项目(2012DFG51590,2011DFR10010)、国家科技重大专项(2011ZX02402)

作者简介: 胡仕玉(1988—),女,硕士研究生,主要从事光电检测技术方面的研究。E-mail: janexf0729@sina.cn

导师简介: 曾爱军(1975—),男,博士,研究员,主要从事偏振光技术和光电检测技术方面的研究。

E-mail: aijunzeng@siom.ac.cn(通信联系人)

对它们进行数值反演来得到薄膜参数是相当困难的^[5-6]。Bosch等^[7]提出利用改进下降单纯形算法给出椭圆参数与薄膜参数的关系,但这种算法是一种局部算法。Cormier等^[8]提出了基于遗传算法的椭圆参数数值反演,这种算法对初值依赖性不强,但存在局部收敛的问题。Tabet等^[9-10]提出利用神经网络算法获得薄膜参数,这种方法需要不断地对算法进行修正和改进,从而求解速度比较慢。Bliokh等^[11-13]提出了采用改进的Otto结构(MOC)产生表面等离子体共振效应,能将金属薄膜的复折射率可视化,但是该研究工作没有给出金属薄膜参数测量的具体方法。Iwata等^[14]提出了将椭圆测量法与MOC相结合测量介质薄膜的厚度,Kaneoka等^[15]提出了利用表面等离子体共振效应测量金属表面上介质薄膜的厚度,但这两种方法只是测量金属表面介质薄膜的厚度,未对金属薄膜的薄膜参数做测量与分析。

本文提出了将表面等离子体共振效应与椭圆成像光路相结合测量金属薄膜参数的方法,在椭圆成像光路中采用p偏振光在金属薄膜与空气界面产生表面等离子体共振效应,利用不产生表面等离子体共振效应的s偏振光以消除背景光的影响,得到表面等离子体共振吸收环垂直方向的归一化反射率曲线,数值拟合得到测量金属薄膜的薄膜参数,这种方法不要求解椭圆方程,数据处理过程简单,求解速度快。

2 测量原理

现有的椭圆成像光路如图1所示,其结构为起偏器-补偿器-样品-检偏器(PCSA)式光路,主要由激光器、准直器、起偏器、补偿器、检偏器、双远心系统和图像传感器组成,其中补偿器由1/4波片构成。激光器发射的光经准直器后经过起偏器,成为线偏振光,线偏振光经过补偿器后产生椭圆偏振光,椭圆偏振光照射到薄膜样品表面后偏振状态改变,通过检偏器后进入图像传感器,通过分析薄膜样品反射的光的光强,可以得到薄膜样品表面的椭圆参数(Δ 、 Ψ),建立椭圆参数与薄膜参数之间的椭圆方程,通过求解非线性超越方程获得样品的参数。

MOC如图2所示,它是将等腰棱镜的底面修改为凸球面,可以在凸球面与金属薄膜之间形成空气间隙。将该结构置于图1中的样品处,则形成了金属薄膜参数的测量光路。在椭圆成像光路中,设置起偏器的透光轴方向产生p偏振光,调整补偿器的快轴方向、检偏器的透光轴方向与起偏器的透光轴方向相同。p偏振光入射到MOC中,反射光经检偏器、双远心系统成像在图像传感器上。当金属-空气界面发生表面等离子体共振效应时,p偏振光的反射率下降,在图像传感器上形成表面等离子体共振吸收图案,它是一个二维的椭圆暗条纹,如图3所示。根据椭圆成像光路的成像放大倍率可以将图像上的像素点转化为实际的距离并作为坐标横轴,对椭圆暗条纹长轴方向的像素灰度变化归一化处理并作为坐标纵轴,可以得到图3中-YY轴上p偏振光经过MOC结构后的反射率曲线,如图4所示。

由于椭圆成像光路采用准直性好的激光,p偏振光实际上不是强度均匀分布的光束,直接利用图3中椭圆暗条纹长轴方向的像素灰度变化得到的反射率曲线则不准确,会对薄膜参数的测量带来很大的误差。为了解决这样一个问题,在保持入射角不变的情况下设置起偏器的透光轴方向产生s偏振光,调整补偿器的快轴方向、检偏器的透光轴方向与起偏器的透光轴方向相同,由于s偏振光入射到MOC中不产生表面等离子体共振效应,则将图像传感器采集的图像做归一化处理即可获得归一化的背景光分布曲线。利用背景光分布曲线对反射率曲线进行归一化校正,则可以获得校正后的反射率曲线,消除了光强不均匀性的影响。

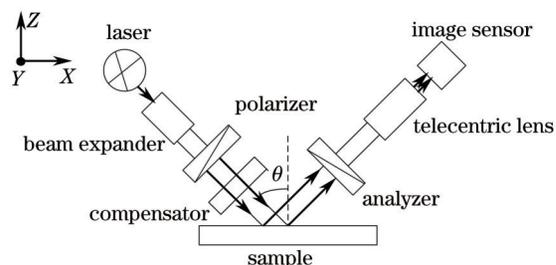


图1 椭圆成像光路

Fig.1 Layout of imaging ellipsometry

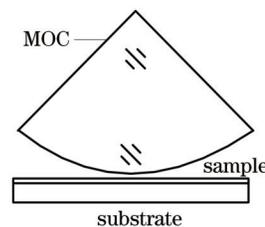


图2 改进的Otto结构

Fig.2 Modified Otto's configuration

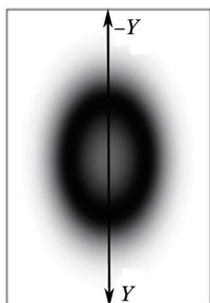


图3 表面等离子体共振吸收图案

Fig.3 Absorption pattern of surface-plasmon resonance

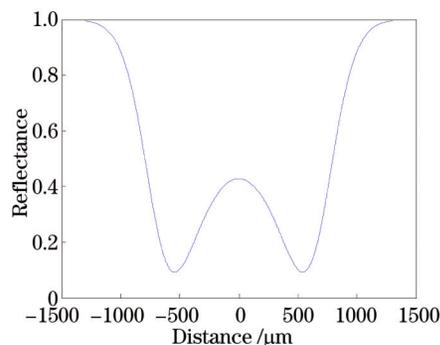


图4 垂直方向的反射率曲线

Fig.4 Reflectance profile along the perpendicular direction

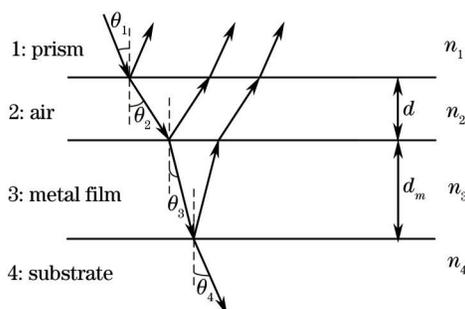


图5 p 偏振光经过四层模型的过程中的反射和折射

Fig.5 Reflection and refraction of p polarized light through four layer model

基于上述 MOC 结构建立的棱镜-空气-金属-基底四层模型如图 5 所示,设 p 偏振光的波长为 λ ,入射角为 θ_1 ,入射到空气、金属薄膜和基底的折射角分别为 $\theta_1, \theta_2, \theta_4$,棱镜、空气和基底的折射率分别为 n_1, n_2, n_4 ,金属薄膜的复折射率为 n_3 ,其中金属薄膜的折射率为 n ,消光系数为 k ,根据折射率定律有

$$n_1 \sin \theta_1 = n_2 \sin \theta_2 = n_3 \sin \theta_3 = n_4 \sin \theta_4, \quad (1)$$

若空气间隙的厚度和金属薄膜的膜厚分别为 d 和 d_m ,凸球面的曲率半径为 R ,椭圆暗条纹长轴对应物面上的每点与椭圆圆心的距离为 s ,根据 MOC 的几何图可知椭圆暗条纹长轴上每点与凸球面间的空气间隙表达式为

$$d = \frac{s^2}{2R}, \quad (2)$$

根据菲涅耳公式可知,在棱镜-空气、空气-金属薄膜、金属薄膜-基底三个界面处, p 偏振光的反射系数表达式为

$$r_{abp} = \frac{n_b \cos \theta_a - n_a \cos \theta_b}{n_b \cos \theta_a + n_a \cos \theta_b}, \quad (3)$$

式中 a 表示界面上的材料, b 表示界面下的材料。利用等效膜层法将棱镜和空气间隙这两层看做整体 M, 基底、金属薄膜和 M 构成一个单层膜结构, 则 p 偏振光在金属薄膜表面的反射系数 r'_{23p} 表达式为

$$r'_{23p} = \frac{r_{23p} + r_{34p} \exp(-i2\delta)}{1 + r_{23p} r_{34p} \exp(-i2\delta)}, \quad (4)$$

式中 δ 为金属薄膜表面相邻的两束反射光之间的相位差, 表达为

$$\delta = 2\pi \frac{d_m}{\lambda} n_3 \cos \theta_3, \quad (5)$$

然后将经过棱镜、空气和金属薄膜看做一个单层膜结构, 计算 p 偏振光经过这个单层膜后的反射系数为

$$R_p = \left| \frac{r_{12p} + r'_{23p} \exp(-i2\beta)}{1 + r_{12p} r'_{23p} \exp(-i2\beta)} \right|^2, \quad (6)$$

式中 β 为棱镜表面相邻的两束反射光之间的相位差, 表达为

$$\beta = 2\pi \frac{d}{\lambda} n_2 \cos \theta_2, \quad (7)$$

(6)式即为 p 偏振光经过 MOC 结构后的反射系数。由上述测量原理可知,入射光的波长 λ 、入射角 θ_1 、棱镜折射率 n_1 、空气的折射率 n_2 、基底的折射率 n_4 、凸球面的曲率半径 R 均为已知值,根据(1)~(7)式可知 p 偏振光经过 MOC 结构后的反射系数 R_p 是关于金属薄膜的折射率 n 、消光系数 k 、膜厚 d 和距离 s 的函数。若确定了金属薄膜的折射率 n 、消光系数 k 、膜厚 d_m , 则可以得到反射系数随距离 s 变化的反射率曲线 R_p 。设定薄膜的初始参数 n_0, k_0, d_{m0} , 设置三个参数的范围和三个参数的变化间隔,将参数范围内所有的 n, k, d_m 组合代入反射系数 R_p 关于距离 s 的函数中进行数值拟合,使得拟合的曲线与测量的反射率曲线误差最小,此时的 n, k, d_m 就是待测金属薄膜参数。

3 测量实验

实验装置实物照片如图 6 所示,其中图 6(a) 椭偏成像装置,图 6(b) 为改进的 Otto 结构。椭偏成像装置的光源是波长为 635 nm 的准直半导体激光,光束口径为 13 mm,起偏器和检偏器均为线偏振玻璃,消光比大于 1000:1,补偿器为 1/4 零级波片,双远心系统满足沙伊姆弗勒成像条件,使得相对于光轴倾斜的被测样品表面能清晰成像,保证了全视场放大倍率的一致性,实现了大视场情况下被测样品表面的一次性清晰成像,图像传感器为 1000 pixel×1000 pixel 的 CCD 相机。采用光栅尺反馈控制入射角和反射角,其角度分辨率为 0.19"。起偏器、补偿器和检偏器的方位角由伺服电机驱动,角度分辨率为 0.405"。CCD 相机采集的图像输入计算机进行处理。MOC 由 H-K9L 玻璃制成,上半部分为等腰直角棱镜,凸球面的曲率半径为 1 m。实验中的金属薄膜为 Cr 膜,厚度约为 25 nm。

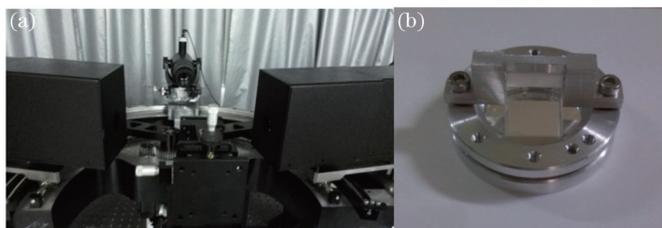


图 6 实验装置实物图。(a) 椭偏成像装置;(b) 改进的 Otto 结构

Fig.6 Experimental setup. (a) Imaging ellipsometer; (b) modified Otto's configuration

在衰减全反射的临界角附近调整椭偏成像光路的入射角,使 p 偏振光在金属-空气界面产生表面等离子体共振效应,并且表面等离子体共振吸收图案中的椭圆暗条纹最暗,椭偏成像光路的入射角最终设置为 42° ,设置起偏器的透光轴方向产生 p 偏振光,补偿器的快轴方向、检偏器的透光轴方向与起偏器的透光轴方向相同,p 偏振光入射到 MOC 中,反射光经检偏器、双远心系统成像在 CCD 相机上,将 CCD 采集的图像做归一化处理。保持入射角不变的情况下设置起偏器的透光轴方向产生 s 偏振光,补偿器的快轴方向、检偏器的透光轴方向与起偏器的透光轴方向相同,同理将 CCD 采集的背景光图像做归一化处理,得到背景光分布曲线。利用背景光分布曲线进行校正,可以获得 p 偏振光校正后的反射率曲线。

根据 MOC 结构建立棱镜-空气-金属-基底的四层模型,采用 Matlab 编写数值拟合程序,为了避免多解问题,将 Cr 的体材料的折射率作为金属薄膜折射率的初始输入参数,并限定金属薄膜折射率 n 、消光系数 k 和膜厚 d_m 的可变范围,金属薄膜折射率 n 的变化范围为 2~4,消光系数 k 的变化范围为 2~4,和膜厚 d_m 的变化范围为 20~30 nm。将 n, k, d_m 代入反射系数 R_p 关于距离 s 的函数中进行数值拟合。当拟合的曲线与测量的反射率曲线误差最小,此时的 n, k, d_m 就是待测金属薄膜 Cr 膜的薄膜参数。测量和拟合的反射率曲线如图 7 所示,其中实线为校正后的反射率曲线,虚线为拟合的反射率曲线。为了验证该方法的有效性,采用 J.A. Woollam Co 公司的 HS-190™ 椭偏仪测量待测金属薄膜 Cr 膜的薄膜参数,以此作为参考值。Cr 膜的薄膜参数的最佳测量值与参考值的结果如表 1 所示,由表 1 可知基于本论文所述方法的测量结果与标准椭偏仪的测量结果一致,很好地验证了该方法的有效性。

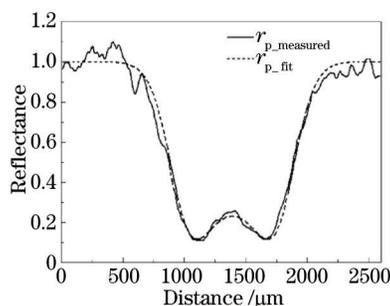


图7 垂直方向的反射率曲线

Fig.7 Reflectance profile along the perpendicular direction

表1 Cr膜的薄膜参数的测量值与参考值

Table 1 Measured values and reference values of Cr thin film

	Refractive index	Extinction coefficient	Thickness /nm
Measured values	2.430	2.99	25.5
Reference values	2.425	2.98	25.9
Error amount	0.005	0.01	0.4

从表1可以看出,两种测量方法得到的金属薄膜折射率 n 、消光系数 k 和膜厚 d_m 还存在一些偏差,下面对本论文所述方法的测量误差进行分析。根据测量原理可知,其测量误差与光源的不均匀性、入射角的误差、起偏器的方位角误差、CCD响应的非线性、样品的表面氧化密切相关。光源的不均匀性改变了图像中反射系数的分布而引入测量误差,利用s光不产生表面等离子共振效应的特性,通过归一化校正反射率曲线消除了影响。入射角的误差同样也会改变图像中反射系数的分布,故需要提高入射角的测量精度,实验中的椭圆成像装置采用步进电机加光栅尺反馈的方式对入射角进行控制,其角度控制精度可以达到 $\pm 0.005^\circ$ 甚至更高,其产生的测量误差完全可以忽略。起偏器的方位角误差会破坏表面等离子体共振的条件,使反射率曲线产生偏移,实验中的椭圆装置采用PMAC卡控制伺服电机来实现方位角的控制,其精度优于 0.05° ,能很好地保证p光入射产生表面等离子体共振的条件。CCD响应的非线性产生的误差类似于光源的不均匀性,故需要对其非线性进行校正,实验中采用的是灰度级数为12位的工业相机,但未对其响应的非线性进行校正,后期可以通过非线性校正来提高测量精度。在测量过程中,不同的样品需要建立不同的拟合计算模型,金属薄膜样品的表面氧化将改变材料的特性进而影响样品的建模,直接影响拟合的薄膜参数精度,因此在样品制作、测量过程中应该严格控制好条件以保证测量的有效性。

4 结 论

本文提出了将表面等离子体共振效应与椭圆成像光路相结合测量金属薄膜参数的方法,这种方法不需要求解椭圆方程,数据处理过程简单,求解速度快。实验中,基于该方法的测量结果与标准椭圆仪的测量结果基本一致,很好地验证了该方法的有效性。

参 考 文 献

- 1 H Zhu, L Liu, Y Wen, *et al.*. High-precision system for automatic null ellipsometric measurement[J]. Appl Opt, 2002, 41(22): 4536-4540.
- 2 A -H Liu, P C Wayner, J L Plawsky. Image scanning ellipsometry for measuring nonuniform film thickness profiles[J]. Appl Opt, 1994, 33(7): 1223-1229.
- 3 D Nečas, I Ohlídal, D Franta, *et al.*. Assessment of non-uniform thin films using spectroscopic ellipsometry and imaging spectroscopic reflectometry[J]. Thin Solid Films, 2014, 571: 573-578.
- 4 Wu Suyong, Long Xingwu, Yang Kaiyong. Technique to minimize the characterization deviations of optical parameters of thin films caused by ellipsometric measurement systematic errors[J]. Acta Optica Sinica, 2012, 32(6): 0631001.
吴素勇, 龙兴武, 杨开勇. 一种最小化薄膜光学参数表征偏差的椭圆测量系统误差处理技术[J]. 光学学报, 2013, 32(6): 0631001.
- 5 J C Comfort, F K Urban, D Barton, An algorithm for analyzing ellipsometric data taken with multiple angles of incidence[J]. Thin

- Solid Films, 1996, 290–291: 51–56.
- 6 D Charlot, A Maruani. Ellipsometric data processing: an efficient method and an analysis of the relative errors[J]. Appl Opt, 1985, 24(20): 3368–3373.
- 7 S Bosch, F Monzonis, E Masetti. Ellipsometric methods for absorbing layers: a modified downhill simplex algorithm[J]. Thin Solid Films, 1996, 289(1–2): 54–58.
- 8 G Cormier, R Boudreau. Genetic algorithm for ellipsometric data inversion of absorbing layers[J]. J Opt Soc Am A, 2000, 17(1): 129–134.
- 9 M F Tabet, W A McGahan. Use of artificial neural networks to predict thickness and optical constants of thin films from reflectance data[J]. Thin Solid Films, 2000, 370(1):122–127.
- 10 X Wang, K -P Chen, M Zhao, *et al.*. Refractive index and dielectric constant transition of ultra-thin gold from cluster to film[J]. Opt Express, 2010, 18(24): 24859–24867.
- 11 Y P Bliokh, R Vander, S G Lipson, *et al.*. Visualization of the complex refractive index of a conductor by frustrated total internal reflection[J]. Appl Phys Lett, 2006, 89(2): 021908.
- 12 Chen Qianghua, Luo Huifu, Wang Sumei, *et al.*. Measurement of air refractive index based on surface plasmon resonance and phase detection by dual-frequency laser interferometry[J]. Chinese J Lasers, 2013, 40(1): 0108001.
陈强华, 罗会甫, 王素梅, 等. 基于表面等离子体共振和双频激光干涉相位测量的空气折射率测量[J]. 中国激光, 2013, 40(1): 0108001.
- 13 Liu Yu, Zhang Haitao, Xu Shuping, *et al.*. Study on the effect of refractive index and metal film thickness on surface plasmon resonance field enhanced surface-enhanced raman scattering[J]. Chinese J Lasers, 2013, 40(12): 1207001.
刘 钰, 张海涛, 徐抒平, 等. 折射率和金属膜厚度对表面等离子体共振场增强表面增强拉曼散射的影响研究[J]. 中国激光, 2013, 40(1): 1207001.
- 14 Iwata T, Mizutani Y. Ellipsometric measurement technique for a modified Otto configuration used for observing surface-plasmon resonance[J]. Opt Express, 2010, 18(14): 14480–14487.
- 15 Kaneoka Y, Nishigaki K, Mizutani Y, *et al.*. Precise measurement of the thickness of a dielectric layer on a metal surface by use of a modified Otto optical configuration[J]. International Journal of Optomechatronics, 2014, 9(1): 1–14.

栏目编辑: 何卓铭