

椭圆偏光谱与椭圆旋向*

朱德瑞 莫 党

(中山大学物理系, 广州 510275)

摘 要 椭圆偏振光谱因其独特的优点广泛应用于薄膜科学和技术中。光度法椭圆偏振光谱中椭圆旋向是不能直接确定的, 从而不能确定椭圆参数 Δ 。这一定程度上有碍椭圆偏振光谱的应用。本文引入克拉末-克朗尼格(Kramers-Kronig)关系, 推导出椭圆参数的 Ψ - Δ 关系, 从频谱的信息得出椭圆旋向。并比较了其应用的结果, 表明由此可实现实验数据从 $[\tan \Psi(\omega), \cos \Delta(\omega)]$ 谱到 $[\Psi(\omega), \Delta(\omega)]$ 谱的转换。

关键词 椭圆偏振光谱, 克拉末-克朗尼格变换, Ψ - Δ 关系。

1 引 言

随着薄膜技术与表面物理日新月异地发展和多种薄膜材料潜在的应用前景, 椭圆偏光谱法这一有近百年历史的技术正不断发展, 广泛应用于工业生产和科学研究^[1]。主要发展表现在: 从可见光波段向红外和紫外发展; 从单层膜向多层膜发展; 从室温向低温和高温发展; 从常压向低压和高压发展。早期工作都是单波长下的所谓消光法测量, 需要在光路中使用光学延迟器, 至少一片 $1/4$ 波片。70年代中期发展起来的入射角、波长连续改变的椭圆偏振光谱技术^[2]克服了消光法的缺点。但这时没有光学延迟器, 从实验数据不能直接得出椭圆的旋向, 即只能得到 $\cos \Delta$, 由于 $0 \leq \Delta \leq 2\pi$, Δ 的确定值无法直接求出。本文以克拉末-克朗尼格关系为理论基础, 推导出 Ψ - Δ 关系, 提出椭圆旋向的判定方法, 实现实验数据从 $[\tan \Psi(\omega), \cos \Delta(\omega)]$ 谱到 $[\Psi(\omega), \Delta(\omega)]$ 谱的转换。

2 无光学延迟器椭圆偏光谱原理

2.1 椭圆偏振光的一般描述

考虑沿 z 正方向传播的单色平面波, 其电矢量只有 x 分量和 y 分量不为零。在 xoy 平面里, (E_x, E_y) 的轨迹正是电矢量端点所描绘的曲线^[3]

$$\begin{aligned} E_x &= a_1 \cos(\tau + \delta_1), \\ E_y &= a_2 \cos(\tau + \delta_2). \end{aligned} \quad (1)$$

式中 $\tau = \omega t - \mathbf{k} \cdot \mathbf{r}$ 为随时间改变的相位因子。消去 τ 可得到一椭圆方程

* 广东省高教局资助项目。

收稿日期: 1996-10-29; 收到修改稿日期: 1997-03-14

$$\left(\frac{E_x}{a_1}\right)^2 + \left(\frac{E_y}{a_2}\right)^2 - 2\frac{E_x E_y}{a_1 a_2} \cos \delta = \sin^2 \delta, \quad (2)$$

其中 $\delta = \delta_2 - \delta_1$, $0 \leq \delta < 2\pi$ 为 x 分量与 y 分量的初相差。迎着光线看, 电矢量端点顺时针方向画椭圆时, 选取为右旋偏振光。当 $0 \leq \delta < \pi$ 时, (2) 式表示右旋的椭圆; 当 $\pi \leq \delta < 2\pi$ 时, (2) 式表示左旋的椭圆。

引入椭偏参数定义关系^[4]

$$\rho = \tan \Psi \exp(i\Delta) = \frac{E_y}{E_x}, \quad (3)$$

这里 $0 \leq \Psi \leq \pi/2$, $0 \leq \Delta < 2\pi$ 称为椭偏参数, 正是椭偏法测量中所要得到的最基本未知量, 由它们以及光的反射和折射理论模型可以计算出被测物质的光学性质。

2.2 椭偏参数的测量

对于起偏器固定、无相位延迟器、转动检偏器的椭偏光谱仪系统, 光电倍增管检测到的光强信号为

$$I(\theta) = I_0[1 + \cos(2\chi) \cos 2(\theta - \phi)] = I_0[1 + a \cos(2\theta) + b \sin(2\theta)] \quad (4)$$

其中,

$$\begin{aligned} a &= \cos(2\chi) \cos(2\phi), \\ b &= \cos(2\chi) \sin(2\phi). \end{aligned} \quad (5)$$

χ 称为椭圆率, ϕ 为椭圆方位角。选取入射面所在的位置为角度的零点, 迎着光线看, 顺时针方向为角度的正方向。对实验数据进行傅里叶分析, 得到

$$I(\theta) = f_0 + f_1 \cos(2\theta) + f_2 \sin(2\theta), \quad (6)$$

与(4)式比较, 则 $a = f_1/f_0$, $b = f_2/f_0$ 。有^[5]

$$a = -\cos(2\Psi), \quad b = \sin(2\Psi) \cos \Delta. \quad (7)$$

当起偏器固定在 45° 时, 可解出椭偏参数,

$$\cos \Delta = \frac{b}{\sqrt{1-a^2}}, \quad \tan \Psi = \sqrt{\frac{1+a}{1-a}}. \quad (8)$$

这里, 由于椭偏参数在范围 $0 \leq \Psi \leq \pi/2$, $0 \leq \Delta < 2\pi$ 取值, 所以只能得到 Ψ 的确定值, Δ 的值与椭圆的旋转方向有关。

3 Ψ - Δ 关系

将椭偏参数的定义式(3)写成频谱形式

$$\rho(\omega) = \tan \Psi(\omega) \exp[i\Delta(\omega)], \quad (9)$$

两边取对数, 有

$$\ln \rho(\omega) = \ln [\tan \Psi(\omega)] + i\Delta(\omega). \quad (10)$$

这表示物质对不同频谱的光信号的响应关系, 由网络理论可知, 它的实部和虚部通过克拉末-克朗尼格关系相联系^[6]。

$$\Delta(\omega) = -\frac{2\omega}{\pi} P \int_0^\infty \frac{\ln [\tan \Psi(\omega')]}{\omega^2 - \omega'^2} d\omega'. \quad (11)$$

P 表示柯西积分的主值。用部分积分法对(11)式积分, 有

$$\Delta(\omega) = \frac{1}{\pi} P \int_0^{\infty} \ln \left| \frac{\omega' - \omega}{\omega' + \omega} \right| \frac{d[\ln \tan \Psi(\omega')]}{d\omega'} d\omega'. \quad (12)$$

这一积分遍及 ω' 轴上除 $\omega' = \omega$ 外的所有点。求这一积分可得到 Δ 的弧度值, 从而确定 Δ 的象限。再由实验值 $\cos \Delta(\lambda)$ 确定 $\Delta(\lambda)$ 的确定值。

4 应 用

用自动化的转动检偏器型椭圆偏振光谱仪(TPP-1 型^[7]椭圆偏振光谱仪的改进型)测得实验原始数据 $[\tan \Psi(\lambda), \cos \Delta(\lambda)]$ 是波长 λ 的谱函数。为了积分方便, 把(12)式改写成

$$\Delta(\lambda) = \frac{1}{\pi} P \int_0^{\infty} \ln \left| \frac{\lambda' - \lambda}{\lambda' + \lambda} \right| \frac{d[\ln \tan \Psi(\lambda')]}{d\lambda'} d\lambda'. \quad (13)$$

通过积分, 从而得到 $\Delta(\lambda)$ 谱。

实际上, 实验测得的总是全频谱的一部分, 上面的积分只能在波长轴的一小段上进行。设实测频谱范围 $[\lambda_1, \lambda_2]$, (13)式积分分为三部分

$$\Delta(\lambda) = \frac{1}{\pi} \left[\int_0^{\lambda_1} F(\lambda', \lambda) d\lambda' + \int_{\lambda_1}^{\lambda_2} F(\lambda', \lambda) d\lambda' + \int_{\lambda_2}^{\infty} F(\lambda', \lambda) d\lambda' \right], \quad (14)$$

其中 $F(\lambda', \lambda) = \ln \left| \frac{\lambda' - \lambda}{\lambda' + \lambda} \right| \frac{d[\ln \tan \Psi(\lambda')]}{d\lambda'} = E(\lambda', \lambda) S(\lambda')$ 。

对前后两部分积分必须采用近似处理, 所以 $\Delta(\lambda)$ 只是一个近似值。只能用其来确定 $\Delta(\lambda)$ 的象限, 当 $\Delta(\lambda) < 180^\circ$ 时, $\Delta(\lambda)$ 在一、二象限, 当 $\Delta(\lambda) > 180^\circ$ 时, $\Delta(\lambda)$ 在三、四象限, 由实验值 $\cos \Delta(\lambda)$ 确定 $\Delta(\lambda)$ 。

$F(\lambda', \lambda)$ 由两部分的乘积组成, 前一部分 $E(\lambda', \lambda)$ 只与波长有关, 后一部分 $S(\lambda')$ 取决于椭圆偏振光谱参数, 整个积分就是这两部分的卷积。因此, $\lambda' \gg \lambda$ 和 $\lambda' \ll \lambda$ 的频谱部分对积分的贡献较小; $\tan \Psi(\lambda')$ 频谱较平坦的部分对积分的贡献也不大。

从图 1 可以看到与椭圆偏振光谱参数无关的 $E(\lambda', \lambda)$ 部分的变化趋势。显然, 非测量部分对积分的贡献相对较小, 因此(14)式积分只取中间部分确定 $\Delta(\lambda)$ 的象限, 所以

$$\Delta(\lambda) \approx \frac{1}{\pi} \int_{\lambda_1}^{\lambda_2} F(\lambda', \lambda) d\lambda'. \quad (15)$$

作为应用的例子, 测量了 Si(111) 衬底上 500 nm 的 SiO_2 薄膜的近红外至近紫外波段的椭圆偏振光谱, 如图 2 所示。图中同时给出了理论计算曲线, 其中 Si(111) 的数据引自文献[8], SiO_2 的数据用仪器测定。

用上面介绍的克拉末-克朗尼格关系确定 $\Delta(\lambda)$ 谱的方法, 先积分得出 $\Delta(\lambda)$ 谱的可能区间, 然后由测量的 $\cos \Delta(\lambda)$ 值计算出 $\Delta(\lambda)$ 谱的最后值。图 3 显示了这一方法的过程和效果。实验结果由克拉末-克朗尼格关系确定的 $\Delta(\lambda)$ 谱与最后的 $\Delta(\lambda)$ 谱有较大的差别, 这是在求积分时采用了近似的原因。

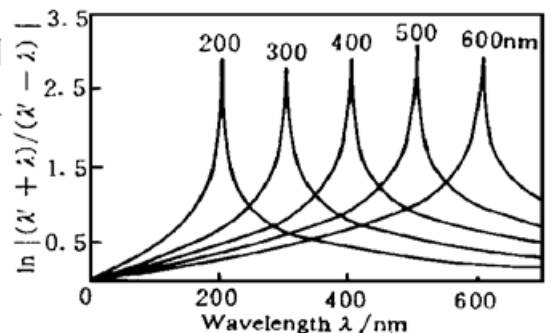


Fig. 1 $E(\lambda', \lambda) - \lambda'$ curves for $\lambda = 200, 300, 400, 500, 600$ nm

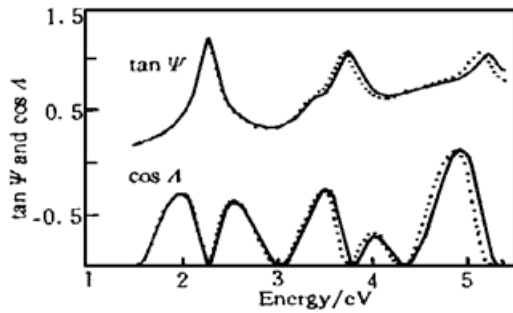


Fig. 2 Ellipsometry data obtained on 500 nm layers of SiO_2 on Si(111) substrates. The dotted lines denote the experimental data, and the solid lines the calculated data from the data of literature^[8]

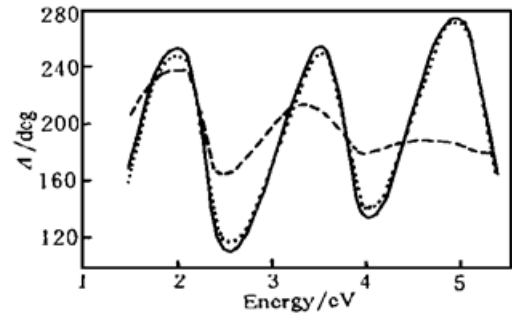


Fig. 3 $\Delta(\lambda)$ spectra of 500 nm layers of SiO_2 on Si(111) substrates. The short-dashed lines denote the calculated data using Eq. (15), the dotted lines the experimental data using Kramers-Kronig relation, the solid lines calculated data from the data of literature^[8]

结束语 讨论了椭圆偏振光谱中运用克拉末-克朗尼格关系确定 $\Delta(\lambda)$ 谱的方法。由于克拉末-克朗尼格关系是一无穷积分，实际应用中必须用近似处理。当频谱较宽时粗略的近似已经足够。在椭圆偏振光谱中应用这一处理结果表明，实验与理论较好地符合。

参 考 文 献

- [1] D. E. Aspnes, New developments in spectroellipsometry: the challenge of surfaces. *Thin Solid Films*, 1993, **233**(1) : 1~ 8
- [2] D. E. Aspnes, A. A. Studna, High precision scanning ellipsometer. *Appl. Opt.*, 1975, **14**(2) : 220 ~ 228
- [3] M. Born, E. Wolf, *Principles of Optics*, Sixth Edition, Pergamon Press, New York, 1980 : 24~ 25
- [4] R. M. A. Azzam, N. M. Bashara, *Ellipsometry and Polarized Light*, North-Holland Publishing Co., Amsterdam, 1977 : 287~ 288
- [5] P. S. Hauge, F. H. Dill, *IBM J. Research & Development*, 1973, **17**(6) : 472~ 489
- [6] C. Kittel, *Introduction to Solid State Physics*, Sixth Edition, John Wiley & Sons, Inc., New York, 1986 : 292~ 295
- [7] 江任荣, 陈树光, 叶贤京等, TPP-1 型椭圆偏振光谱仪. *仪器仪表学报*, 1983, **4**(4) : 440~ 443
- [8] 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. *Phys. Rev. (B)*, 1983, **27**(2) : 985~ 1009

Spectroscopic Ellipsometry and the Sense of Elliptical Polarization

Zhu Derui Mo Dang

(Department of Physics, Zhongshan University, Guangzhou 510275)

(Received 29 October 1996; revised 14 March 1997)

Abstract Spectroscopic ellipsometry is a useful technique for studying surfaces and thin films. It has been used to determine the real part and imaginary part of indices and thicknesses of thin layer synchronically. However, photometric ellipsometer can only measure $\cos \Delta$, cannot determine directly the value of Δ at each wavelength. We apply the Kramers-Kronig transformation relation to complex reflection ratio and derive Ψ - Δ relation. As an example, we approach a single layer film on a substrate.

Key words spectroscopic ellipsometry, Kramers-Kronig transformation, Ψ - Δ relation.