

文章编号 : 0253-2239(2001)06-0729-05

双重傅里叶变换红外椭偏光谱系统的研制*

陈岳立¹⁾ 张荣君¹⁾ 夏国强¹⁾ 赵海斌¹⁾ 王松有¹⁾ 陈良尧¹⁾ 褚君浩²⁾ 王志明²⁾

(1), 复旦大学信息学院光科学与工程系, 上海 200433)
(2), 中国科学院上海技术物理研究所, 上海 200433)

摘要: 介绍一种新型红外椭圆偏振光谱实验系统。实验中采用了对光子能量和方位角作双傅里叶变换, 及同步旋转检偏和起偏器(RAP)的方法。根据傅里叶变换的四个余弦交流分量, 计算相应的光学常数。经过对实验系统各误差来源的分析和纠正, 提高了实验精度, 使误差控制在 1% 以内。测量了 Au 等样品的红外介电函数谱, 并用德鲁得(Drude)模型作拟合运算, 获得了与理论计算相一致的结果。

关键词: 红外光谱学; 椭圆偏振光谱学; 傅里叶变换

中图分类号: O433 文献标识码: A

1 引 言

采用光学方法可对许多固体材料的宏观和微观物理性质进行深入研究, 其中最直接的方法就是通过光谱测量与微观机理相联系, 来认识和理解光与物质相互作用的本质。在凝聚态光学性质研究领域, 已发展出多种方法用于光学常数的准确测量。

椭偏学的研究始于 100 多年前^[1~4]。在此原理上发展起来的椭偏光谱实验系统有多种模式, 如消光式和光度式等。消光式椭偏系统是通过调节相位延迟器、偏振片等光学元件的方位角, 使系统的输出光强为零, 在此条件下求得相应椭偏参数。光度式椭偏系统则采用了对光强随起偏或检偏方位角变化作傅里叶分析的方法, 除本工作采用的同步旋转检偏和起偏器(RAP)型外^[5], 该类型椭偏系统还有旋转检偏器(RAE)等方式^[5], 它们不仅在可见光谱区已获得成功应用, 而且也可用于红外光谱区的测量^[7,8]。虽然近年来在红外区的椭偏光谱学研究在不断进展, 但仍存在许多问题有待解决。主要是在低能量的红外光谱区, 红外探测器探测效率低、噪声较大, 因此对系统测量灵敏度造成影响; 在高亮度和高稳定度的红光光源的获得以及红外偏振器件的研制方面, 也存在着困难。另一方面, 红外光谱区有着广阔的研究与应用前景^[9~11], 金属和合金、窄禁带

半导体和超晶格材料等都在红外光谱区有丰富的信息值得研究。

本工作针对红外光谱的特点, 设计研制了一种新型红外椭圆偏振光谱系统, 它具有如下优点: 反射式无损检测; 速度快, 10 min 可测得 $2100\text{ cm}^{-1} \sim 10000\text{ cm}^{-1}$ 波段样品的各种光学常数; 采用同步旋转检偏和起偏器方式的新设计; 实验过程由计算机一体化控制, 测量并计算出各种光学参数。

2 原理与方法

2.1 椭圆偏振光学测量的基本原理

一束偏振光入射到各向同性样品表面上时, 其 p 光与 s 光的反射系数分别为

$$\tilde{r}_p = r_p \exp(i\delta_p), \quad \tilde{r}_s = r_s \exp(i\delta_s), \quad (1)$$

两式相除可得

$$\tilde{\rho} = \tilde{r}_p / \tilde{r}_s = \rho_0 \exp(i\Delta), \quad (2)$$

其中

$$\rho_0 = \tan\psi = r_p / r_s, \quad \Delta = \delta_p - \delta_s, \quad (3)$$

ψ 、 Δ 为椭偏参数, δ_p 、 δ_s 分别为 p 光和 s 光的相位。通过椭偏参数即可求得复介电函数 $\tilde{\epsilon} = \epsilon_1 + i\epsilon_2$

$$\tilde{\epsilon} = \sin^2\Phi + \sin^2\Phi \tan^2\Phi \left(\frac{1 - \tilde{\rho}}{1 + \tilde{\rho}} \right)^2, \quad (4)$$

其中 Φ 为入射角。

2.2 光强随偏振器方位角变化的傅里叶分析

本实验系统的测量原理如图 1 所示。光源首先通过方位角与入射面垂直的固定偏振器 P_0 , 然后通过起偏器 P_1 经样品反射后, 到达检偏器 A, 最后进入探测器。其中, 起偏器和检偏器方位角 θ_p 和 θ_A 保

* 国家自然科学基金(69878003)和上海应用物理研究中心资助项目。

收稿日期: 1999-10-14; 收到修改稿日期: 2000-02-28

持 1 : 2 的比例关系同步旋转。这种方式称之为同步旋转检偏和起偏器型。最后从检偏器出射的偏振光的电场矢量可表示为

$$\mathbf{E}_f = \begin{bmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 0 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \cos\theta_A & \sin\theta_A \\ -\sin\theta_A & \cos\theta_A \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \bar{r}_s & 0 \\ 0 & \bar{r}_p \end{bmatrix} \times \begin{bmatrix} \cos\theta_P & -\sin\theta_P \\ \sin\theta_P & \cos\theta_P \end{bmatrix} \begin{bmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 0 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \cos\theta_P & -\sin\theta_P \\ \sin\theta_P & \cos\theta_P \end{bmatrix} \times \begin{bmatrix} 1 \\ 0 \end{bmatrix} E_0 = (\bar{r}_s \cos\theta_A \cos^2\theta_P + \bar{r}_p \sin\theta_A \cos\theta_P \sin\theta_P) E_0, \quad (5)$$

相应出射光强为

$$I \propto |\mathbf{E}_f|^2 = \eta \left(\cos^2\theta_A \cos^4\theta_P + \frac{1}{4} \rho_0^2 \sin^2\theta_A \sin^2 2\theta_P + \frac{1}{2} \rho_0 \cos\Delta \sin 2\theta_A \sin 2\theta_P \cos^2\theta_P \right), \quad (6)$$

式中 η 为与光强和探测器特征有关的常数。

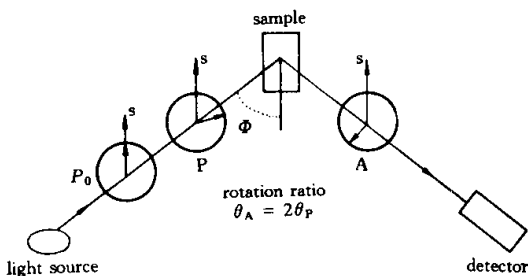


Fig. 1 Optical configuration of the RAP ellipsometric system in which the azimuthal angles of the rotating P and A are clockwise to the s axis

当起偏和检偏器的方位角 θ_P 和 θ_A 以 1 : 2 的关系同步旋转时,即 $\theta_A = 2\theta_P = \omega t$,可得到光强依赖于检偏器方位角 θ_A 的余弦分频表达式:

$$I = I_0 + I_1 \cos\theta_A + I_2 \cos 2\theta_A + I_3 \cos 3\theta_A + I_4 \cos 4\theta_A. \quad (7)$$

式中 I_0 为直流成分,而

$$\left. \begin{aligned} I_1 &= \chi(3 + \rho_0 \cos\Delta), \\ I_2 &= \chi(2 - \rho_0^2), \\ I_3 &= \chi(1 - \rho_0 \cos\Delta), \\ I_4 &= \chi(1 + \rho_0^2 - 2\rho_0 \cos\Delta)/4. \end{aligned} \right\} \quad (8)$$

(8)式的四个方程中只含有三个未知数,故可用两套独立的方程组算出 ρ_0 、 $\cos\Delta$ 。两套计算结果的符合程度即代表了系统自洽度,它直接反映了实验数据测量的可靠程度。

$$\left. \begin{aligned} \rho_0 &= \left[\frac{\chi(I_1 + I_3 - 2I_2)}{(I_1 + I_3)} \right]^{1/2}, \\ \cos\Delta &= \frac{(I_1 - 3I_3)}{[\chi(I_1 + I_3)\chi(I_1 + I_3 - 2I_2)]^{1/2}} \end{aligned} \right\} \quad (9)$$

$$\left. \begin{aligned} \rho'_0 &= \left[\frac{\chi(I_1 + I_3 - 2I_2)}{\chi(4I_4 + 2I_1 + I_2)} \right]^{1/2}, \\ \cos\Delta' &= \frac{\chi(I_1 - 3I_3) - \chi(4I_4 + I_2)}{[\chi(I_1 + I_3)\chi(I_1 + I_3 - 2I_2)]^{1/2}} \end{aligned} \right\} \quad (10)$$

由于椭圆参数计算中没有直流分量 I_0 ,从而消除了背景光和暗电流等较大的直流本底噪声。计算中只需要各交流分频系数 $I_1 \sim I_4$,然后按(9)式或(10)式就可求出椭圆参数,因为在红外区存在的水、二氧化碳或其他吸收机制一般不会影响各交流分频之间的关系,所以按上述公式求出的椭圆参数基本不会受到这类背景光谱的影响。

自洽度检验也是同步旋转检偏和起偏器方式的特点之一,由于缺乏校对实验结果的标准红外光谱数据,实验数据精度的改进正是以实验结果的自洽作为依据的^[5]。

2.3 对光子能量作傅里叶分析

实验室使用的红外光源的强度都比较弱,红外探测器效率也较低,因此,通常的单色仪分光然后进行波长扫描的方法在红外光谱区具有很大的局限性。为提高数据的信噪比,本实验光谱系统利用了迈克耳孙干涉原理。如图 2 所示,光源通过分束器变为两束,分别经过固定平面镜和运动平面镜反射后产生一定光程差 δr ,然后对光子能量随 δr 的变化作傅里叶变换,即可得到光强按波数或能量的分布

$$\mathcal{K}(1/\lambda) = \int \mathcal{K}(\delta r) \cos(2\pi\delta r/\lambda) d\delta r. \quad (11)$$

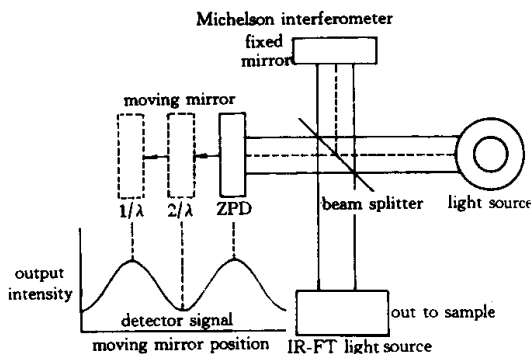


Fig. 2 The configuration of the Michelson interferometer used in the infrared Fourier transform analysis

实验中,要求对光子能量和偏振方位角的两套傅里叶变换分别在两个独立的变换空间进行而不互相产生干扰,通过在偏振器转动的每一个方位角位

置 $(\theta_{P_i}, \theta_{A_i})$ 测得一组按波数分布的光强数据 $K(1/\lambda)_i$, 然后由计算机对每个波数位置光强随偏振器方位角的周期变化作傅里叶分析 , 便能在全部测量波段快速求得每个波数点的各分频系数 $I_1 \sim I_4$:

$$I_k \frac{1}{\lambda} = \frac{2}{n} \sum_{i=1}^n \left[\int K(\delta r) \cos\left(\frac{2\pi\delta r}{\lambda}\right) d\delta r \right]_i \cos(k\theta_{A_i}), \quad k = 1, 2, 3, 4 \quad (12)$$

再按 (4) 式和 (8) 式即可求得复介电函数。

3 实验和讨论

3.1 实验系统构成

图 3 为双重傅里叶分析红外椭偏仪系统俯视图。红光光源为 15 W 的卤素钨灯, 通过迈克耳孙干涉仪形成红外傅里叶干涉光源 (Necolet 460 型 IR-FT

产品, 采用 CaF_2 分束器和液氮制冷的 InSb 探测器), 光束经过光阑将光斑直径限制在约 5 mm。偏振器采用 MgF_2 晶体制作的洛匈偏振棱镜, 工作波段 $0.18 \mu\text{m} \sim 7 \mu\text{m}$, 经严格校验, 光束穿过棱镜的偏心率小于 0.01° 。旋转起偏器和检偏器分别安装在两个高精度细分步进马达的转轴上, 轴为中空, 内径约 8 mm, 使光束能从中穿过。样品安装在一个转台上, 红外探测器和检偏器则安装在与另一转台的移动臂上。两个转台也由高精度细分步进马达控制, 保证入射角在 $30^\circ \sim 90^\circ$ 范围内以 0.01° 的分辨率连续可调。用 He-Ne 激光器进行样品对光, 确保入射角的精度达到 0.01° 。通过微机进行系统集成, 完成数据的采集、传输、处理与输出等功能。整个系统置于光学防震平台之上。

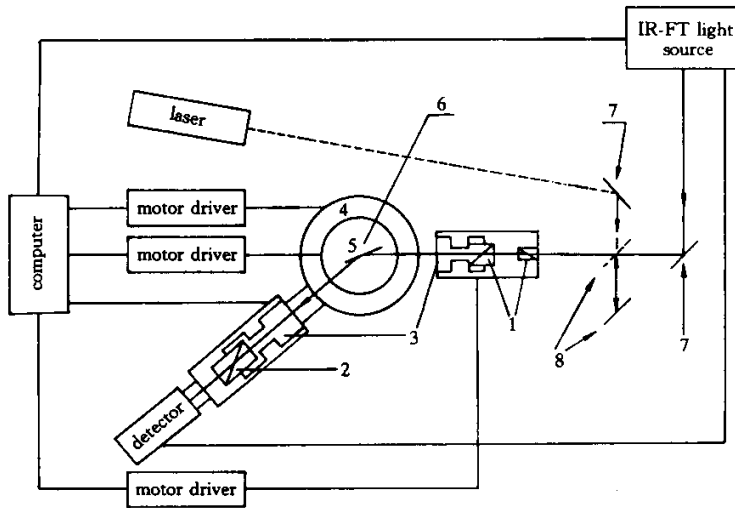


Fig.3 The apparatus configuration of the infrared double-Fourier spectro-ellipsometer. 1: polarizer; 2: analyzer; 3: stepping motors; 4: rotating stage of detect ion arm; 5: rotating stage of sample; 6: sample mounting plate; 7: fixed mirrors; 8: moving mirror

3.2 系统定标和误差修正

首先对光路系统进行准直。采用与红外探测光源同轴的 He-Ne 激光光束, 使之穿过入射光臂与探测器转动臂各个光阑和样品台中心的定位小孔, 此时转动臂与入射臂严格成 180° 角, 即定标了转动臂的位置。然后对各偏振器的方位角按下述步骤精确调节: 粗调起偏器 $\theta_{P_0} \approx \theta_p \approx 0^\circ$, 即偏振方位角在与入射面垂直的 s 方向, 放入硅样品, 将入射角固定在近红外布儒斯特角约 74° 附近, 于是, 从样品反射的是较纯的 s 向偏振光。通过微机调整检偏方位角 θ_A , 使输出的光强达到最小值, 则 A 与 s 轴严格正交, $\theta_A = 90^\circ$ 。再将转动臂转到 180° 移去样品, 让光路直接通过各偏振器, 细调 θ_{P_0} 和 θ_p , 使输出光强为最小值, 即满足 $\theta_{P_0} = \theta_p = 0^\circ$ 的条件。重复上述过程, 可

精确定标 P_0 、 P 和 A 的位置。作为定标准确性的检验测量, 固定起偏器, 只旋转检偏器 A , 波数为 6500 cm^{-1} 处光强随检偏器方位角变化的波形图显示在图 4 中。

从图 4 中可看到光信号强度在检偏器方位角的 0° 与 180° 处有微小的差别, 这是光学元件在旋转过程中的不均匀性造成的(如杂散光的影响)。这将在傅里叶分频 $I_1 \sim I_4$ 信号中引入附加的信号成分, 从而引起光学参数的计算误差。通常, 电场强度随检偏器方位角变化可表达为余弦关系

$$E = E_0 \cos\theta_A. \quad (13)$$

现将电场强度随检偏器方位角的变化表示为傅里叶展开形式

$$E_a = E_0 \cos\theta_A (1 + \delta_0 + \delta_1 \cos\theta_A + \delta_2 \cos 2\theta_A + \delta_3 \cos 3\theta_A + \dots). \quad (14)$$

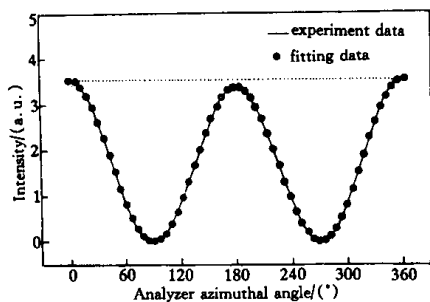


Fig. 4 The signal waveform of the analyzer measured at wave number 6500 cm^{-1} and the fitting data using model $E_a = E_0 \cos A (1 + \delta \cos \theta_A)$

略去二阶小量, 得到光强

$$I_a = I_0 \cos^2 \theta_A [1 + \chi \delta_0 + \delta_1 \cos \theta_A + \delta_2 \cos 2\theta_A + \delta_3 \cos 3\theta_A + \dots], \quad (15)$$

按上式对实验数据进行拟合的结果显示在图 4 中, 发现 δ_2 以上高阶交流项的影响可忽略不计, 而直流修正项 δ_0 也不影响实验数据处理, 因此(14)式可简化为

$$E_a = E_0 \cos \theta_A (1 + \delta_0 + \delta \cos \theta_A) \approx E_0 \cos \theta_A (1 + \delta \cos \theta_A), \quad (16)$$

上式已能较准确反映偏振器旋转时的响应函数特性。由此得到光强为

$$I_a = |E_a|^2 = I_0 \cos^2 \theta_A (1 + 2\delta \cos \theta_A) = \gamma [1 + 3\delta \cos \theta_A + \cos 2\theta_A + \delta \cos 3\theta_A] = I_{0a} + I_{1a} \cos \theta_A + I_{2a} \cos 2\theta_A + I_{3a} \cos 3\theta_A. \quad (17)$$

从(17)式得到三倍频与基频即 $\cos 3\theta_A$ 与 $\cos \theta_A$ 的系数关系为 1:3, 三倍频与二倍频的系数关系为 $\delta:1$ 。实验测得三倍频与基频系数, 证实了 1:3 的关系, 同时由三倍频和二倍频系数关系, 获得修正参数 δ 。引入 δ 项后, 数据自洽度有很大提高, 如图 5 所示。这里给出的自洽度 C_s 按下式进行计算

$$C_s = \frac{1}{2n} \sum_{i=1}^n \left\{ \frac{[\epsilon_1(\sigma_i) - \epsilon'_1(\sigma_i)]}{[\epsilon_1(\sigma_i) + \epsilon'_1(\sigma_i)]/2} + \frac{[\epsilon_2(\sigma_i) - \epsilon'_2(\sigma_i)]}{[\epsilon_2(\sigma_i) + \epsilon'_2(\sigma_i)]/2} \right\}, \quad (18)$$

其中 $\sigma_i (\omega_i = 1/\lambda_i)$ 为各测量波数, n 为全光谱测量点数。

自洽度由修正前的 13.7% 提高到 0.65%。

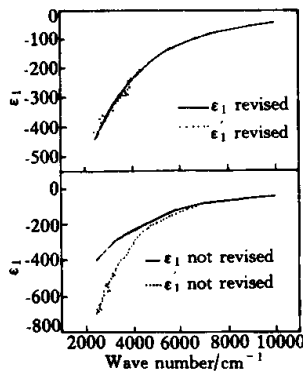


Fig. 5 ϵ_1 spectra of Au sample. The discrepancy of ϵ_1 in the high energy region is smaller than that in the low energy region, related to δ term which is much smaller in the high energy region. By adding a correction term of δ , the data self-consistency is well improved

3.3 Au 样品测量结果

采用本实验系统测量了 Au 薄膜样品的近红外复介电函数谱, 结果如图 6 所示。其实部和虚部都能与可见区光谱数据^[5]衔接, 并且与自由电子即德鲁德模型^[12]符合良好:

$$\epsilon_1 = \epsilon_b - \frac{\omega_p^2}{\omega^2 + \gamma^2} = \epsilon_b - \frac{E_p^2}{E^2 + E_\gamma^2}, \quad (19)$$

$$\epsilon_2 = \frac{\omega_p^2 \gamma}{\omega^3 + \gamma^2 \omega} = \frac{E_p^2 E_\gamma}{E^3 + E_\gamma^2 E}, \quad (20)$$

$$\omega_p^2 = \frac{4\pi N_e e^2}{m^*}, \quad (21)$$

其中 ω_p 为等离子共振频率, γ 为电子弛豫时间 τ 的倒数, m_{eff} 为电子有效质量。对 ϵ_1 曲线用(19)式拟合, 得到 $E_p = 9.06 \text{ eV}$, $E_\gamma = 0.30 \text{ eV}$, 弛豫时间 $1/\gamma$ 在 10^{-14} s 的量级, 电子有效质量 m_{eff} 与电子的质量 m_0 之比 m_{eff}/m_0 约为 0.98, 都与理论计算和其他测量结果相一致。

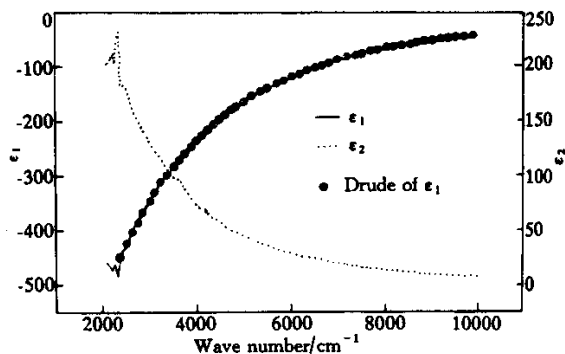


Fig. 6 Experimental complex dielectric function of the Au film sample. Using Drude model to fit ϵ_1 , the parameters of the plasma resonant frequency and free electron relaxation time can be obtained

结论 在红外椭偏光谱学研究领域,有许多困难因素制约了实验数据精度的提高,本工作针对这些困难采取了相应的办法。对于红外光源亮度低的弱点,通过对光子能量作傅里叶分析,使探测器每次探测的都是全部工作波长区的红外光强,显著提高了测量信噪比。对于红外噪声与干扰,则采用同步旋转检偏和起偏器方式对偏振器的方位角变化作傅里叶分析,避免背景光、暗电流、水与二氧化碳吸收等对实验数据的影响,并以自洽方式定标。实验中发现光强随偏振器旋转的不均匀性,给出理论模型修正,较好地克服了这一问题。本工作采用的原理方法可应用于更宽的红外波长区,以便对众多红外信息功能材料的光学性质进行细致研究。

参 考 文 献

- [1] Vedam K. Spectroscopic ellipsometry: A historical overview. *Thin Solid Films*, 1998, **313** ~ **314** (1 ~ 2): 1 ~ 9
- [2] Aspnes D E, Studna A A. High precision scanning ellipsometer. *Appl. Opt.*, 1975, **14** (1) 220 ~ 228
- [3] Johnson R L, Barth J, Cardona M. Spectroscopic ellipsometry with synchrotron radiation. *Rev. Sci. Instrum.*, 1989, **60** (7): 2209 ~ 2212

- [4] Jellison G E. Optical functions of GaAs, GaP, and Ge determined by two-channel polarization modulation ellipsometry. *Optical Materials*, 1992, **1** (3): 151 ~ 160
- [5] Chen L Y, Feng X W, Su Y *et al.*. Design of a scanning ellipsometer by synchronous rotation of the polarizer and analyzer. *Appl. Opt.*, 1994, **33** (7): 1299 ~ 1305
- [6] Aspnes D E. Fourier transform detection system for rotating-analyzer ellipsometers. *Opt. Commun.*, 1973, **8** (3): 222 ~ 225
- [7] Roseler A. IR spectroscopic ellipsometry: Instrumentation and result. *Thin Solid Films*, 1993, **234** (1 ~ 2) 307 ~ 313
- [8] Drevillon B. Spectroscopic ellipsometry in the infrared range. *Thin Solid Films*, 1998, **313** ~ **314** (1 ~ 2) 625 ~ 630
- [9] Ossikovski R, Blayo N, Drevillon B *et al.*. Determination of the composition and thickness of borophosphosilicate glass films by infrared ellipsometry. *Appl. Phys. Lett.*, 1994, **65** (10): 1236 ~ 1238
- [10] Brunet-Bruneau A, Vuye G, Frigerio J M *et al.*. Infrared ellipsometry investigation of SiO_xN_y thin films on silicon. *Appl. Opt.*, 1996, **35** (25) 4998 ~ 5004
- [11] Tiwald T E, Thompson D W, Woollam J A *et al.*. Application of IR variable angle spectroscopic ellipsometry to the determination of free carrier concentration depth profiles. *Thin Solid Films*, 1998, **313** ~ **314** (1 ~ 2) 661 ~ 666
- [12] Guggler H, Jurich M, Swalen J D. Observation of an index-of-refraction-induced change in the Drude parameters of Ag films. *Phys. Rev. (B)*, 1984, **30** (8) 4189 ~ 4195

Design of an Infrared Spectroscopic Ellipsometer Using Double-Fourier-Transform Method

Chen Yueli¹⁾ Zhang Rongjun¹⁾ Xia Guoqiang¹⁾ Zhao Haibin¹⁾ Wang Songyou¹⁾
Cheng Liangyao¹⁾ Chu Junhao²⁾ Wang Zhiming²⁾

(1), Department of Optical Science and Engineering, Fudan University, Shanghai 200433
(2), Institute of Technical Physics, The Chinese Academy of Sciences, Shanghai 200433

(Received 14 October 1999; revised 28 February 2000)

Abstract: A new type of infrared spectroscopic ellipsometer has been designed and constructed. A double-Fourier-transform method, i. e. Fourier transforms carried out as both functions of the photon energy and azimuthal angle, is used. Using the configuration of synchronous rotation of the polarizer and analyzer (RAP), and according to four cosine frequencies of Fourier transform, the optical constants can be obtained with any one of two sets of ac signal calculations. After a revised model being used to correct the data error arising from the slight anisotropy of analyzer the data self-consistency is improved to be better than 1% by comparing two sets of data. The spectra of the dielectric function for a Au film sample were measured and fitted with the Drude model. The result shows a very good agreement between experiment and theory.

Key words: infrared spectroscopy; spectroscopic ellipsometry; Fourier transform