

文章编号: 0253-2239(2004)07-885-5

确定薄膜厚度和光学常数的一种新方法^{*}

沈伟东 刘旭 叶辉 顾培夫

(浙江大学现代光学仪器国家重点实验室, 杭州 310027)

摘要: 借助于不同的色散公式,运用改进的单纯形法拟合分光光度计测得的透过率光谱曲线,来获得薄膜的光学常数和厚度。用科契公式分别对电子束蒸发的 TiO_2 和反应磁控溅射的 Si_3N_4 ,以及用德鲁特公式对电子束蒸发制备的 ITO 薄膜进行了测试,结果表明测得的光学常数和厚度,与已知的光学常数以及台阶仪测得的结果具有很好的一致性。这种方法不仅简便,而且不需要输入任何初始值,具有全局优化的能力,对厚度较薄的薄膜也可行。采用不同的色散公式可以获得各种不同薄膜的光学常数和厚度,这在光学薄膜、微电子和微光机电系统中具有实际的应用价值。

关键词: 薄膜光学; 光学常数; 色散公式; 单纯形法

中图分类号: O484.5 文献标识码: A

A New Method for Determination of the Optical Constants and Thickness of Thin Film

Shen Weidong Liu Xu Ye Hui Gu Peifu

(State Key labs of Modern Optical Instrumentation, Zhejiang University, Hangzhou 310027)

(Received 30 May 2003; revised 11 September 2003)

Abstract: Based on the dispersion equations, "Downhill Simplex" method is utilized to measure the thickness and optical constants of thin film by fitting the curve of measured transmission spectrum. TiO_2 , Si_3N_4 thin films deposited by electron gun evaporation and reactive magnetron sputtering respectively are measured with Cauchy formula and ITO film deposited by electron gun evaporation with Drude formula. Experiments show that the results got by this method and by α -step apparatus agree well. No initial input is necessary for this simple method to realize the global optimization. With various dispersion formula, it is also suitable for many kinds of films with thinner thickness, which will be useful in thin film optics, microelectronic and micro-optical electro-mechanical system (MOEMS).

Key words: thin film optics; optical constants of thin film; dispersion equation; "Downhill simplex" method

1 引 言

对薄膜光学常数以及厚度的测定已经有很多文献作了报导^[1~5],但是现有这些方法都存在着一些不足。椭圆法和棱镜耦合法,不仅需要建立比较复杂的测试设备而且影响测试精度的因素很多,棱镜耦合法还要求测试薄膜的厚度较厚;包络线法只能

对弱吸收膜进行测试,而且薄膜必须很厚;常用的光度法大多需要测量薄膜的反射率和透射率光谱曲线,由于反射率测量比较困难,因此其测量精度远不如透射率测量高。常用的分光光度计能精确测量透射率,但难以精确测量绝对反射率。近年来随着微光机电系统和微电子工艺的发展,如何简便快速地从一条正入射透射率光谱曲线得出薄膜的厚度和复折射率得到了人们特别的关注^[6,7]。

本文提出了对不同类型的材料,借助相应的色散公式,利用改进的单纯形方法拟合薄膜的透过率

^{*} 国家自然科学基金(69976026)资助课题。

E-mail: adongszju@sohu.com

收稿日期:2003-05-30; 收到修改稿日期:2003-09-11

光谱曲线,获得薄膜厚度和光学常数的一种方法。此方法只需简单的测量透过率曲线,而且由于光谱曲线不需要极值,所以可以获得厚度较薄薄膜的光学常数。单纯形法很适于未知量个数较多以及它们取值范围变化大的曲线拟合,而且它具有很强的全局优化能力,因此测定薄膜光学常数时,不需要任何的初始输入,就能很快地得到结果。这在微光机电系统和微电子研究中具有潜在的应用。

2 原 理

在 $N_s = n_s - ik_s$ 的基板上有一层均匀的薄膜,如图 1 所示。假定薄膜的复折射率为 $N = n - ik$,则由薄膜的特征矩阵可得^[8]

$$\begin{bmatrix} B \\ C \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \cos \delta & \frac{i}{n - ik} \sin \delta \\ i(n - ik) \sin \delta & \cos \delta \end{bmatrix} \begin{bmatrix} 1 \\ n_s - ik_s \end{bmatrix}, \quad (1)$$

其中 $\delta = \frac{2\pi}{\lambda}(n - ik)d$ 是这层薄膜的相位厚度, d 是薄膜的空间厚度,那么由(1)式就可以得到薄膜和基板的组合导纳 $Y = C/B$,薄膜的透过率为

$$T = \frac{4n_0 |n_s - ik_s|}{|n_0 B + C|^2}, \quad (2)$$

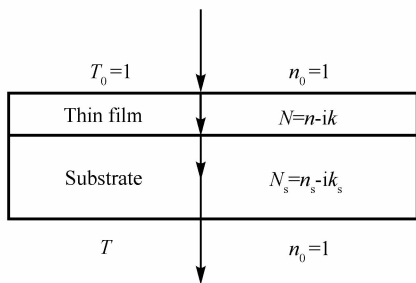


Fig. 1 System of a thin film on a thick finite substrate

因为基板后表面会有反射,因此透过率会降低,必须进行修正。考虑到基板的厚度比较大,非相干光入射时,认为没有干涉现象,只是强度的叠加,则

$$T' = \frac{TT_s}{1 - R_s R}, \quad (3)$$

其中 T' 是考虑基板后表面反射后的透过率, R, T 是基板镀膜面反射率和透过率, R_s, T_s 是基板和空气界面的透过率和反射率。对于玻璃基板 $R_s = 0.042$, $T_s = 0.958$,所以可以近似的认为 $T' = 0.96T$ 。

透过率曲线中包含了 n, k, d 所有的信息,但要从一个透过率值获得 n, k, d 三个变量的值是不可能的,这时我们只能应用色散模型,拟合测得的透过率曲

线,从而得到薄膜的厚度和色散参量。评价函数取为

$$F(d, c_1, c_2, c_3, c_4, \dots) = \sum_{\lambda_0}^{\lambda_n} [t_i - t(\lambda_i, d, c_1, c_2, c_3, c_4, \dots)]^2, \quad (4)$$

其中 t_i 为实际测得的 λ_i 处的透过率, $t(\lambda_i, c_1, c_2, c_3, c_4, \dots)$ 是在这个波长上由薄膜参量算得的理论上的透过率。评价函数的数值由薄膜的几何厚度和描述色散模型的参量来决定,因此求得评价函数的最小值就可以获得厚度和参量的值。

单纯形方法^[9]是光学薄膜的优化中运用较多的方法。由 M 维空间中的 $(M + 1)$ 个初始值构成的单纯形进行反射、延伸、收缩、压缩等变换(M 为自变量的个数),直到单纯形压缩到充分小,得到一个近似极小点。它受初始结构的影响小,并且不需要计算导数,因此特别适用于这种表达式较复杂而且变量较多的情况。对于光学薄膜,折射率取值范围一般为 $1.3 \sim 5$,而厚度范围为 $10 \sim 3000$ nm,因此在优化过程中,作为变量的厚度和色散模型中各个参量之间数值有很大的差别,必须对它们作一些修正进行归一化,修正后变量如下:

$$v'_x = (v_x - \underline{v}_x) \frac{\overline{d}_x - \underline{d}_x}{v_x - \underline{v}_x} + \underline{d}_x, \quad (5)$$

v_x 表示色散模型的参量变量, \underline{d}_x 表示薄膜的厚度变量,这样在 $[\underline{v}_x, \overline{v}_x]$ 中均匀分布的色散变量就转化成 $[\underline{d}_x, \overline{d}_x]$ 中均匀分布的优化变量,给单纯形提供了一个良好的搜索空间。

在优化过程中,单纯形经过反复变换后很容易出现降维现象,以致找不到局部极小点,因此我们采用了初始值 $2M$ 个顶点的多面体来进行变换。由于顶点增多,这样在优化过程中即使有降维,也不会影响到优化的进行。评价函数中自变量较多且表达式也较复杂,因此会在很多地方取到局部优化点,为了跳出局部点,而找到和薄膜实际情况一致的全局优化点,我们加上了一些限制条件,比如合适的评价函数值 (< 0.01), 折射率 $n = 1.3 \sim 5$, $d = 10 \sim 2000$ nm, 正常色散区信息等,只要得到的局部极小点不满足限制条件,就重新随机投初始点进行优化,不断的更改初始点,直至找到一个满足要求的全局最优点,由于随机投点本身具有搜索功能,而且是对宽波段内的透过率曲线拟合,因此一定能找到较好的点。初始值都由计算机程序随机产生因而不需要人为地输入任何初始常数,也就是不需要预先知道太多的薄膜信息。

我们假定薄膜是均匀的,对于不同的薄膜,选择适合它的不同色散模型,那么只要测出薄膜的透过

率曲线,通过单纯形法拟合就可以得到薄膜的折射率、吸收系数和厚度。

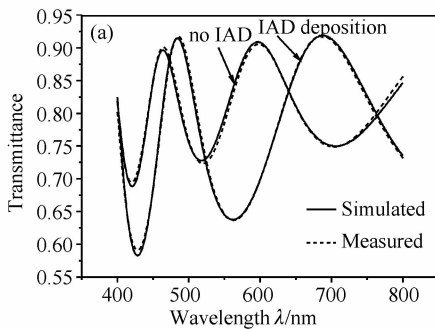
3 实 验

在清洗干净的玻璃基板上,分别用不同的方法镀上各种单层膜。用电子束蒸发制备 TiO_2 和透明导电膜;反应磁控溅射制备 Si_3N_4 薄膜。用分光光度计(UV-3101PC, Shimadzu)测量透过光谱。测量的波长范围取为 $400\sim 800\text{ nm}$,波长间隔 0.5 nm 。对磁控溅射制备的 Si_3N_4 ,在基板中间先甩了 $200\ \mu\text{m}$ 宽的光刻胶,在镀膜结束后,用丙酮溶液剥离薄膜,从而可以用台阶仪来测量薄膜的几何厚度,来验证拟合获得厚度的准确性。

3.1 科契色散模型

对于大多数介质薄膜,在远离吸收波段时,它们的光学常数都满足科契色散模型^[10],

$$n(\lambda) = n_1 + \frac{n_2}{\lambda^2}, \quad k(\lambda) = k_1 \exp\left(\frac{k_2}{\lambda}\right), \quad (6)$$



这个模型中有四个参量,加上薄膜的厚度,一共有 5 个参量,需要优化来确定。图 2 就是电子束蒸发的用离子辅助(IAD)和无离子辅助的 TiO_2 薄膜的透射率分光曲线和折射率。电子枪束流为 230 mA ,离子源阳极电压 180 V ,阳极电流 4 A ,背景真空为 $3.0\times 10^{-3}\text{ Pa}$ 。图 2(a) 中点线是测量得到的实际的透过率光谱,实线是用单纯形法拟合得到的曲线,两者一致性很好,图 2(b) 是计算到的折射率,可以看到离子辅助蒸镀的薄膜的折射率明显比没有离子辅助的高,说明其聚集密度有了提高。计算结果为,没有离子辅助的薄膜厚度为 435.365 nm ,折射率满足

$$n = 1.94626 + 40364/\lambda^2,$$

消光系数

$$k = 0.00135452 \exp(52.4507/\lambda^2);$$

有离子辅助的膜厚 295.687 nm ,折射率满足,

$$n = 2.17946 + 66751.2/\lambda^2,$$

消光系数

$$k = 0.0001174 \exp(298.032/\lambda^2).$$

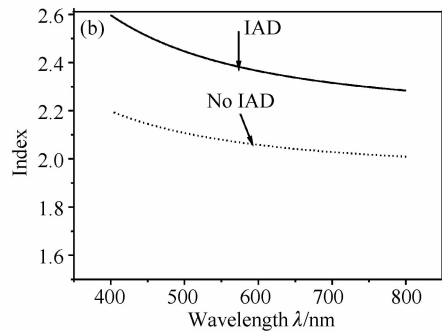


Fig. 2 TiO_2 thin film with and without IAD deposition. (a) Transmission spectrum, (b) Index

图 3 为磁控溅射的 Si_3N_4 薄膜,射频(RF)功率 200 W ,以 110° 取向的 Si 作为靶材,充入 N_2 进行反应溅射,Ar 为背景气体,真空室背景真空为 $5.0\times 10^{-4}\text{ Pa}$,镀膜时气压 2.5 Pa 。图 3(a) 中分别为 Ar: N_2 流量比为 $20:40$,Ar: N_2 流量比为 $20:20$ 时实测的透过率曲线和拟合的透过率曲线,图 3(b) 是用

单纯形法拟合得到的折射率。从图中可以看出,薄膜的折射率偏低,在 550 nm 的时候,分别只有 1.67 和 1.76 ,远远低于等离子体增强化学气相沉积(PECVD)制备的折射率 2.0 的数值。这主要是由于驻留在真空室内的水汽引起的,真空室辉光放电离子轰击靶面,使驻留的水汽挥发,而水汽中的氧离

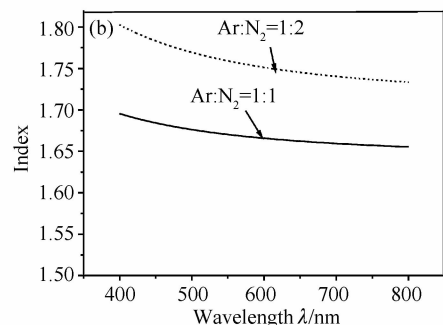
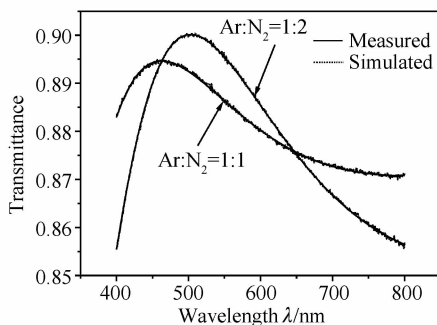


Fig. 3 Si_3N_4 thin film deposited with different gas flow ratio. (a) Transmission spectrum, (b) Index

子极度活泼和 Si 反应生成氧化物,从而使膜中含有大量的氧化硅,折射率降低。可以看到,通过增加 N_2 的比例,可以使 Si 和 N_2 反应更充分,从而折射率也提高了。模拟得到的结果为,对 Ar: N_2 流量比为 20:40 情况,折射率

$$n = 1.7104 + 14749.9/\lambda^2,$$

消光系数

$$k = 0.0034052 \exp(137.458/\lambda),$$

厚度 142.8 nm;而对 Ar: N_2 流量比为 20:20 的情况,折射率

$$n = 1.64203 + 8556.64/\lambda^2,$$

消光系数

$$k = 0.0055078 \exp(123.877/\lambda),$$

厚度 131.791 nm。用台阶仪测得的薄膜厚度分别为 150 nm, 139 nm, 误差分别为 4.8%, 5.18%。这些误差主要是由薄膜生长过程中的非均匀性,色散模型不能完全吻合以及溅射薄膜厚度均匀性较差等因素引起的。

3.2 德鲁特色散模型

对于金属和透明导电膜薄膜满足德鲁特模型,

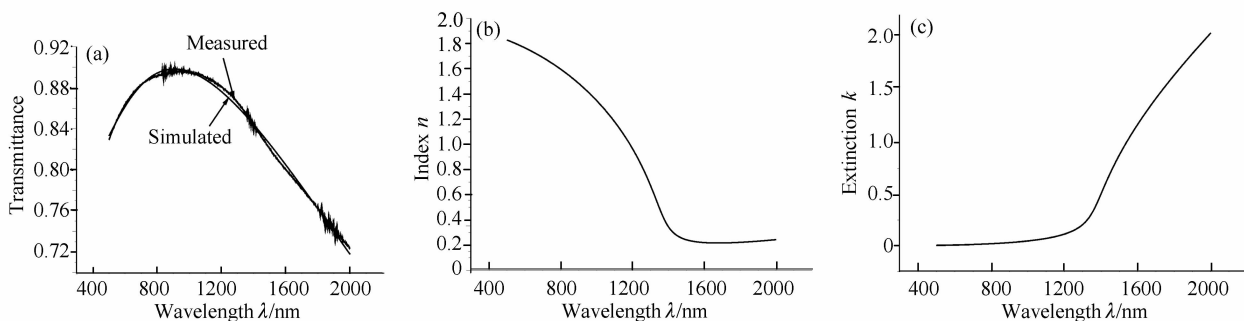


Fig. 4 Transmission spectrum and optical constant of ITO thin film

对于不同的薄膜材料,应该选择合适的色散模型来拟合透过率曲线,从而获得它的光学常数和厚度,比如适于介质薄膜的科契模型、塞尔迈耶尔(Sellmeier)模型、洛仑兹振荡模型等;用于金属和透明导电膜的德鲁特模型;对于非晶态的半导体和绝缘体材料可以用 Tauc-Lorentz 公式^[13]。如果不知道被测薄膜的色散性质,可以用各种不同的色散模型去尝试,只有很好描述薄膜性质的模型才能很好的拟合测得的透过率曲线,从而测得薄膜厚度和光学常数。

结论 借助于测量的透过率曲线,运用不同的色散模型,用改进的单纯形方法进行拟合,可以得到薄膜的光学常数以及厚度。通过不同的实验验证了这种

该理论给出介电常数和光子能量的关系^[11],

$$\begin{cases} \epsilon = (n - ik)^2 = \epsilon_1 - i\epsilon_2, \\ \epsilon_1(\omega) = \epsilon_\infty - \frac{\omega_N^2}{\omega^2 + \gamma^2}, \\ \epsilon_2(\omega) = \frac{\gamma}{\omega} \frac{\omega_N^2}{\omega^2 + \gamma^2}, \end{cases} \quad (7)$$

其中 ϵ_∞ 为高频介电常量, ω_N 是等离子体振动频率, γ 为弛豫能频率, ω 为光子频率。这个模型中,由于 ω 已知,故有三个参量,加上薄膜厚度共有四个参量需要优化确定。

图 4(a)就是电子束蒸发的透明导电膜实测透过率曲线和拟合的曲线,从中可以看出运用德鲁特模型和单纯形方法,拟合曲线和测试曲线非常一致。图 4(b)和图 4(c),分别是折射率和消光系数的拟合曲线,可以看到在可见光区和近红外,透明导电膜的光学特性接近于介质膜,在红外接近于金属膜。拟合后的结果为 $\epsilon_\infty = 3.856$, 对应于 ω_N 的 $\lambda_N = 698.096$ nm, 对应于 γ 的 $\lambda_0 = 16023$ nm, 厚度 50.8288 nm。测出的光学常数和已知透明导电膜的光学常数^[12] 具有很好的一致性。

方法的正确性。相比于其他光学常数的测试方法,该法具有简便的优点,只需测量一条透过率曲线,无需输入任何带有薄膜信息的初始值。不需要极值点,所以可以测量厚度很薄薄膜的光学常数。实际的薄膜中,折射率常有微小的不均匀性,并且任何色散公式都不可能是完善的,但是由此引起的误差对常用薄膜通常都在 5% 以内,这对于很多应用来说已经足够了。运用单纯形法,可以很快的测得薄膜的厚度和光学常数,这在微电子和微光机电系统中,实时获得刻蚀状况以及基板表面氧化层厚度等方面具有实际的应用价值。

参 考 文 献

1 Swanepoel R. Determination of the thickness and optical

- constants of amorphous silicon. *J. Phys. (E)*, 1983, **16**: 1214~1222
- 2 Arndt D P, Azzam R M A, Bennett J M *et al.*. Multiple determination of the optical constants of thin-film coating materials. *Appl. Opt.*, 1984, **23**(20):3571~3596
- 3 Jiang Yi, Cao Zhuangqi, Shen Qishun *et al.*. Determination of the complex dielectric coefficient and thickness of absorbing films using guided waves. *Acta Optica Sinica (光学学报)*, 2000, **20**(5):642~646 (in Chinese)
- 4 Gu Peifu, Li Haifeng, Zhang Yueguang *et al.*. Refractive indexes of oxidized thin films deposited by ion beam sputtering. *Acta Optica Sinica (光学学报)*, 2002, **22**(3): 290~293 (in Chinese)
- 5 Li Maohe, Zhang Meidun. Refractive index measured by optical fiber Michelson interferometer. *Acta Optica Sinica (光学学报)*, 2000, **20**(9):1294~1296 (in Chinese)
- 6 Forouhi A R, Bloomer I. Simultaneous determination of thickness and optical constants of thin films. *Proc. SPIE*, 1995, **2439**:126~136
- 7 Bosch S, Ferre-Borrull J, Sancho-Parramon J *et al.*. A general-purpose software for optical characterization of thin films: specific features for microelectronic applications. *Solid-State Electronics*, 2001, **45**(5):703~709
- 8 Tang Jingfa, Gu Peifu. *Thin Film Optics and Technology (薄膜光学和技术)*. Beijing: China Machine Press, 1989. 18~20 (in Chinese)
- 9 Xi Shaolin, Zhao Fengzhi. *The Numerical Method of Optimization (最优化计算方法)*. Shanghai: Shanghai Science and Technology Press, 1983. 177~183 (in Chinese)
- 10 Born M, Wolf E. *Principle of Optics (光学原理)*. Yang Jiasun Transl. Beijing: Science Press, 1978. 118~126 (in Chinese)
- 11 Fang Rongchuan. *Solid Spectroscopy (固体光谱学)*. HeFei: University of Science and Technology of China Press, 2001. 10~15 (in Chinese)
- 12 Hamberg I, Granqvist C G. Evaporated Sn-doped In_2O_3 films: Basic optical properties and applications to energy-efficient windows. *J. Appl. Phys.*, 1986, **60**(11): 123~159
- 13 Jellison G E. Parameterization of the optical functions of amorphous materials in the interband region. *Appl. Phys. Lett.*, 1996, **69**(3):371~373