利用多个标准样品校准光谱椭圆偏振仪

宋国志[1,2] 刘 涛[2*] 谌雅琴[2] 李国光[2] 王建东[1]

[1] 电子科技大学物理电子学院，四川 成都 610054

[2] 中国科学院微电子研究所微电子器件与集成技术重点实验室，北京 100029

摘要 光谱椭偏仪是常用的测量薄膜厚度及材料光学性质的仪器，其准确性主要由系统的校准过程确定。提出一种新的利用标准样品校准光谱椭偏仪的方法。该方法通过对多个已知厚度和已知材料特性的薄膜样品进行测量，利用测量得到的多个样品的傅里叶系数光谱与包含未知校准参数的理论光谱之间进行对比，通过最小二乘法拟合，回归求解出整个系统的未知校准参数，包括偏振器方位角，波片延迟，波片方位角和系统入射角等。将该方法的应用领域扩展到 200～1000 nm 的宽光谱区域，并通过测量 3～13 nm 的 SiO_2/Si 薄膜样品，实验验证了该方法的有效性，准确性达到 0.194 nm。该方法相对于传统校准方法更加简单、快速。

关键词 薄膜；校准；光谱椭偏仪；最小二乘法；光学常数

中图分类号 O436.3 **文献标识码** A **doi:** 10.3788/AOS201434.0312003

Calibration of Spectroscopic Ellipsometer Using Multiple Standard Samples

Song Guozhi[1,2] Liu Tao[2] Chen Yaqin[2] Li Guoguang[2] Wang Jiandong[1]

[1] *School of Physical Electronics, University of Electronic Science and Technology of China, Chengdu, Sichuan* 610054, *China*

[2] *Key Laboratory of Microelectronics Devices and Integrated Technology, Institute of Microelectronics, Chinese Academy of Sciences, Beijing*, 100029, *China*

Abstract Spectroscopic ellipsometer is a common instrument for measuring film thicknesses and optical properties, whose accuracy largely depends on the calibration procedure of ellipsometry system. We propose a new calibration method by measuring several standard thin film samples with known thickness and dielectric function to obtain the experimental Fourier coefficient spectra. Fit these spectra to theoretical spectra which includes the calibration parameters using least-squares method and then solve these parameters of the ellipsometry system, including the azimuth of polarized elements, the retardation of waveplate, the azimuth of waveplate and the incident angle etc. We have extended this method to broadband spectrum of 200～1000 nm and verified the validity by measuring the SiO_2 thin films in the thickness range of 3～13 nm and demonstrated good measurement accuracy of 0.194 nm. This new method is easier and faster than traditional calibration method.

Key words thin films; calibration; spectroscopic ellipsometer; least-squares method; optical constants

OCIS codes 120.2130; 120.4640; 120.5700; 120.6200

1 引 言

椭圆偏振仪简称椭偏仪，是测量薄膜厚度和材料光学常数的一种光学测量仪器，通过测量探测光束经样品反射或透射前后偏振态的变化，再结合光学物理模型反演出样品的光学常数和薄膜厚度等信息。椭偏仪具有非接触、无损伤、非苛刻性和灵敏度高等优点，已被广泛应用于测定透明薄膜[1-2]、吸收薄膜[3]、双层[4]和多层复合膜[5]的光学性质，表征四

收稿日期： 2013-08-30；**收到修改稿日期：** 2013-10-23

基金项目： 中国科学院科研装备研制项目(28Y3YZ018001)、国家重大专项资助项目(2011ZX02101-005)

作者简介： 宋国志(1988—)，男，硕士研究生，主要从事椭偏仪方面的研究。E-mail: gzsong1125@gmail.com

导师简介： 王建东(1978—)，男，博士，副教授，主要从事非线性光学方面的研究。E-mail: jdwang@uestc.edu.cn

* **通信联系人。** E-mail: liutao@ime.ac.cn

面体非晶碳薄膜的化学键结构[6]，研究透明基底和表面粗糙度对测量的影响[7]等领域。

椭偏仪通常由光源、偏振元件、样品和探测器件组成，根据旋转偏振元件的不同[8]分为旋转检偏器型椭偏仪(RAE)、旋转起偏器型椭偏仪(RPE)和旋转补偿器型椭偏仪(RCE)三种类型，根据系统结构的不同又分为 P_RSA(旋转起偏器-样品-检偏器)、PSA_R(起偏器-样品-旋转检偏器)、$PSCA_R$(起偏器-样品-补偿器-旋转检偏器)、PC_RSA(起偏器-旋转补偿器-样品-检偏器)、PSC_RA(起偏器-样品-旋转补偿器-检偏器)和 PC_RSC_RA(起偏器-旋转补偿器-样品-旋转补偿器-检偏器)等。不同类型和结构的椭偏仪不仅系统复杂度、测量灵敏度和精度等各不相同，而且系统的校准过程及待校准的参数也不尽相同。如在 P_RSA/PSA_R 系统中，需要校准的参数只有3个，即起偏器、检偏器的初始方位角 P_S、A_S 及入射角。而在 PSC_RA 系统中，除了校准以上参数外，还需校准补偿器的初始方位角 C_S 和相位延迟函数 $\delta(\lambda)$。椭偏系统结构越复杂，需要校准的参数也越多。

椭偏仪的传统校准方法有残余函数校准法[9]，相位校准法[10]，双区相位校准和光谱单区相位校准法[11]，强度校准法[12]等。以科研应用中常见的 PSC_RA 椭偏仪为例，其校准过程是[13]：首先，校准入射平面的角度，即起偏器的初始方位角 P_S。以平行或垂直入射面的特殊平面为中心区域，通过构建一定的校准函数，采用精密的步进电机控制起偏器小角度步进旋转，得出一系列校准函数值，校准函数通常为二次曲线函数，其最小值所对应的起偏器的角度即为 P_S 值。其次，确定补偿器的初始方位角 C_S。将校准好的 P_S 作为已知参数，利用各傅里叶系数的相位函数关系式确定 C_S 值。最后，将校准好的 P_S 和 C_S 作为已知参数，根据函数性质确定检偏器的方位角 $A-A_S$，其中 A 为刻度盘读数，A_S 为校准参数值。值得说明的是，通常校准补偿器的相位延迟函数 $\delta(\lambda)$ 需采用直通式平台。传统校准方法要求起偏器小角度步进旋转，对电机的旋转精度要求较高，以得到更真实的实验数据，从而获得更准确的校准值。然而，高精度的电机无疑增量了系统的成本，同时不可避免地引入一定的机械旋转误差。传统校准方法需逐步校准每个参数，且校准 $\delta(\lambda)$ 时需要搭建另一套直通式系统或须将椭圆偏振仪设计包含可变角至直通式状态，工作量较大，系统更复杂。

文献[1]提出了通过校准样品校准椭偏系统参数的方法，并成功应用于单波长椭偏仪中。本课题组以同样的思路将该方法扩展应用到包括深紫外的宽光谱椭偏系统中，其校准的参数包括 P、A、d_c、θ_0、C_S，相对于单波长系统，波片的延迟 δ 不再是一个数值，而是随波长变化的相位函数。在光谱椭圆偏振仪的系统校准中，波片的相位函数 δ 采用厚度未知的色散方程进行描述，以减少拟合过程中未知参数的个数。

本文提出了一种全新的校准光谱椭偏仪的方法。该方法通过测量多个已知厚度和材料(折射率 n 和消光系数 k)的标准薄膜样品，得到对应的实验傅里叶系数光谱。利用最小二乘法回归计算实验光谱和包含未知校准参数的理论光谱，迭代计算出系统的未知校准参数。从理论模拟和实验应用两方面，将该方法应用于包含深紫外 200～1000 nm 的宽光谱椭偏系统，验证了该方法的正确性。

2　PSC_RA 结构椭偏系统及原理

基于 PSC_RA 结构的诸多优点[1]，实验中采用自主研制的 PSC_RA 结构的光谱椭偏系统，其系统结构原理如图1所示。图中，1为光源；2、6为准直光

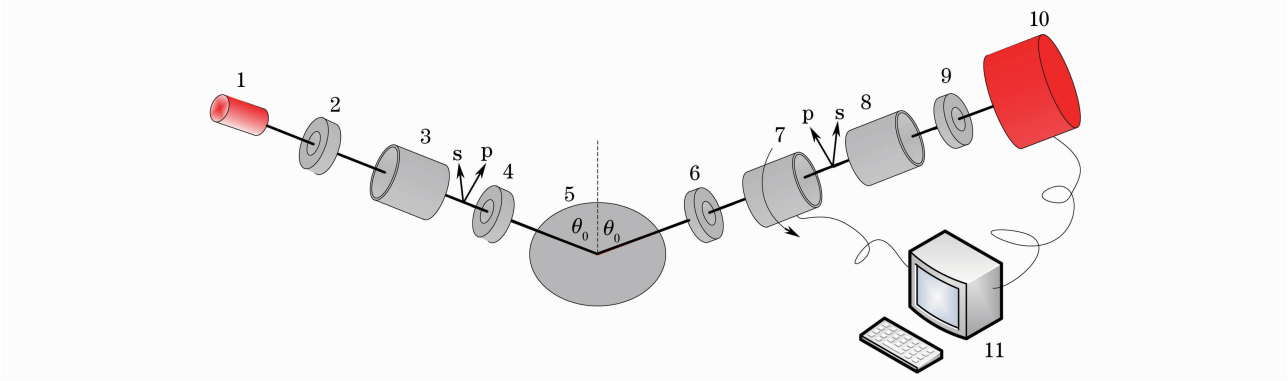

图1　PSC_RA 光谱椭偏仪原理图

Fig. 1　Schematic diagram of PSC_RA spectroscopic ellipsometer

学系统，产生准直光束；3、8 分别为起偏器和检偏器，用于产生和检测线偏振光；4、9 为聚焦光学系统；5 为样品；7 为补偿器，用于补偿不同波长的相位变化；10 为探测系统，用于接收或采集光强数据；11 为系统控制、数据采集和数据分析与处理单元。

在椭偏仪器中，每个光学偏振元件都可描述为一个琼斯矩阵或穆勒矩阵，因此 PSC_RA 椭偏系统可以描述为多个矩阵相乘的形式[14-15]

$$\boldsymbol{S}_{\mathrm{out}} = \boldsymbol{M}_{\mathrm{A}}\boldsymbol{R}(A)\boldsymbol{R}(-C)\boldsymbol{M}_{\mathrm{C}}\boldsymbol{R}(C)\boldsymbol{M}_{\mathrm{S}}\boldsymbol{R}(-P)\boldsymbol{M}_{\mathrm{P}}\boldsymbol{S}_{\mathrm{in}}, \tag{1}$$

式中 P、A 分别为起偏器、检偏器的初始方位角，C 是补偿器快轴方向与入射平面的夹角，$\boldsymbol{S}_{\mathrm{in}}$ 是入射光源（自然光）的斯托克斯向量；$\boldsymbol{S}_{\mathrm{out}}$ 是探测器接收出射光的斯托克斯向量；$\boldsymbol{R}(\alpha)$ 是坐标旋转矩阵，旋转角度为 α；$\boldsymbol{M}_{\mathrm{P}}$、$\boldsymbol{M}_{\mathrm{A}}$、$\boldsymbol{M}_{\mathrm{C}}$、$\boldsymbol{M}_{\mathrm{S}}$ 分别为起偏器、检偏器、补偿器和样品的穆勒矩阵。将(1)式展开得到理论光强的数学表达式[1,14-15]

$$\begin{aligned} I = S_{\mathrm{out}}(1) &= I_0[1+\alpha_2\cos 2C+\beta_2\sin 2C+\alpha_4\cos 4C+\beta_4\sin 4C] = \\ &I_0[1+\alpha_2\cos 2(\omega_{\mathrm{C}}t+C_{\mathrm{S}})+\beta_2\sin 2(\omega_{\mathrm{C}}t+C_{\mathrm{S}})+\alpha_4\cos 4(\omega_{\mathrm{C}}t+C_{\mathrm{S}})+\beta_4\sin 4(\omega_{\mathrm{C}}t+C_{\mathrm{S}})], \end{aligned} \tag{2}$$

且

$$\alpha_2 = -\sin\delta\sin 2A\sin 2P\sin 2\Psi\sin\Delta/\alpha_0, \tag{3a}$$

$$\beta_2 = \sin\delta\cos 2A\sin 2P\sin 2\Psi\sin\Delta/\alpha_0, \tag{3b}$$

$$\alpha_4 = 1/2(1-\cos\delta)[\cos 2A(\cos 2P-\cos 2\Psi)-\sin 2A\sin 2P\sin 2\Psi\cos\Delta]/\alpha_0, \tag{3c}$$

$$\beta_4 = 1/2(1-\cos\delta)[\cos 2A\sin 2P\sin 2\Psi\cos\Delta+\sin 2A(\cos 2P-\cos 2\Psi)]/\alpha_0, \tag{3d}$$

$$\alpha_0 = 1-\cos 2P\cos 2\Psi+1/2(1+\cos\delta)[\cos 2A(\cos 2P-\cos 2\Psi)+\sin 2A\sin 2P\sin 2\Psi\cos\Delta], \tag{3e}$$

式中 I_0 为平均光强，ω_{C} 为补偿器的旋转角频率，C_{S} 为数据采集时刻补偿器的初始方位角，即 $t=0$ 时刻光轴与入射平面的夹角。α_2，β_2，α_4，β_4 分别为各次谐波分量对应的归一化傅里叶系数，δ 为补偿器的相位延迟函数 $\delta(\lambda)$，Ψ、Δ 为样品的椭偏角（为入射角度 θ_0 的函数）。P、A、δ、θ_0、C_{S} 是系统的未知校准参数。

数据采集时，探测系统采集的只是光强信息，并不能分辨补偿器方位角，所以实际光强数据都可看作是以 $2\omega_{\mathrm{C}}$ 为基频的各次谐波函数与对应系数乘积的叠加，其函数关系可表示为[16]

$$\begin{aligned} I(t) = I_0[&1+\alpha_2'\cos 2\omega_{\mathrm{C}}t+\beta_2'\sin 2\omega_{\mathrm{C}}t+ \\ &\alpha_4'\cos 4\omega_{\mathrm{C}}t+\beta_4'\sin 4\omega_{\mathrm{C}}t], \end{aligned} \tag{4}$$

式中 α_2'，β_2'，α_4'，β_4' 为存在波片初始相位角情况下的实验傅里叶系数。与理论傅里叶系数存在如下关系[1,16]：

$$\begin{bmatrix}\alpha_m' \\ \beta_m'\end{bmatrix} = \begin{bmatrix}\cos mC_{\mathrm{S}} & \sin mC_{\mathrm{S}} \\ -\sin mC_{\mathrm{S}} & \cos mC_{\mathrm{S}}\end{bmatrix}\begin{bmatrix}\alpha_m \\ \beta_m\end{bmatrix}, \quad m = 2,4. \tag{5}$$

通常，实验采集傅里叶系数 α_2'，β_2'，α_4'，β_4' 一般采用光电二极管阵列（PDA）光谱仪，利用外部触发信号控制光谱的数据采集，使 PDA 在一个光学周期内积分 $N(N\geqslant 5)$ 次，采集 N 个光强积分值，通过这些积分值可得到归一化实验傅里叶系数。采用外部触发信号使 PDA 在一个光学周期内积分 8 次，得到 8 个对应的光强积分值，其表示为[15]

$$S_j = \int_{(j-1)T_{\mathrm{c}}/8}^{jT_{\mathrm{c}}/8} I(t)\mathrm{d}t, \quad j = 1,\cdots,8, \tag{6}$$

式中 $T_{\mathrm{c}}=\pi/\omega_{\mathrm{C}}$ 为系统的光学周期，ω_{C} 为补偿器的旋转角频率。实验采集的傅里叶系数 α_2'，β_2'，α_4'，β_4' 与 S_j 存在如下关系[15]

$$\alpha_2' = (S_1+S_2-S_3-S_4-S_5-S_6+S_7+S_8)/(2I_0'), \tag{7a}$$

$$\beta_2' = (S_1+S_2+S_3+S_4-S_5-S_6-S_7-S_8)/(2I_0'), \tag{7b}$$

$$\alpha_4' = (S_1-S_2-S_3+S_4+S_5-S_6-S_7-S_8)/(2I_0'), \tag{7c}$$

$$\beta_4' = (S_1+S_2-S_3-S_4+S_5+S_6-S_7-S_8)/(2I_0'), \tag{7d}$$

$$I_0' = (S_1+S_2+S_3+S_4+S_5+S_6+S_7+S_8)/\pi. \tag{7e}$$

综上所述，实验傅里叶系数 α_2'，β_2'，α_4'，β_4' 均可由采集到的光强积分值计算得到，且由此得到的傅里叶系数均是归一化的。

3　样品校准法及原理

3.1　样品校准法理论公式描述

由(3)式和(5)式可知，α_2'，β_2'，α_4'，β_4'也可由未知校准参数 P，A，C_S，δ 和样品参数 Ψ，Δ 表示：

$$\alpha_2'=(-\sin 2A\cos 2C_S+\cos 2A\sin 2C_S)\sin\delta\sin 2P\sin 2\Psi\sin\Delta/\alpha_0, \tag{8a}$$

$$\beta_2'=(\sin 2A\sin 2C_S+\cos 2A\cos 2C_S)\sin\delta\sin 2P\sin 2\Psi\sin\Delta/\alpha_0, \tag{8b}$$

$$\alpha_4'=1/2(1-\cos\delta)[(\cos 2A\cos 4C_S+\sin 2A\sin 4C_S)(\cos 2P-\cos 2\Psi)+(\cos 2A\sin 4C_S-\sin 2A\cos 4C_S)\sin 2P\sin 2\Psi\cos\Delta]/\alpha_0, \tag{8c}$$

$$\beta_4'=1/2(1-\cos\delta)[(\cos 2A\cos 4C_S+\sin 2A\sin 4C_S)\sin 2P\sin 2\Psi\cos\Delta+(\sin 2A\cos 4C_S-\cos 2A\sin 4C_S)(\cos 2P-\cos 2\Psi)]/\alpha_0, \tag{8d}$$

$$\alpha_0=1-\cos 2P\cos 2\Psi+1/2(1+\cos\delta)[\cos 2A(\cos 2P-\cos 2\Psi)+\sin 2A\sin 2P\sin 2\Psi\cos\Delta], \tag{8e}$$

式中

$$\delta(\lambda)=2\pi d_c(n_o-n_e)/\lambda, \tag{9}$$

为波片的相位延迟函数，不同波长下对应的相位延迟各不相同。由于本实验平台所用波片为 MgF_2 材料的零级波片，n_o、n_e 可根据 MgF_2 材料的光谱色散方程[16]

$$n^2-1=\sum_j A_j\lambda^2/(\lambda^2-\lambda_j^2) \tag{10}$$

计算得到。所以(9)式中波片的相位延迟函数 $\delta(\lambda)$ 仅表示为波片厚度 d_c 的函数。

当薄膜样品的厚度 d 和材料已知时，样品的椭偏参数表示为[13]

$$\Psi=\arctan\left|\frac{r_p}{r_s}\right|=\arctan\left|\frac{r_{01,p}+r_{12,p}\exp(-i2\beta)}{1+r_{01,p}r_{12,p}\exp(-i2\beta)}\Big/\frac{r_{01,s}+r_{12,s}\exp(-i2\beta)}{1+r_{01,s}r_{12,s}\exp(-i2\beta)}\right|, \tag{11a}$$

$$\Delta=\arg\left(\frac{r_p}{r_s}\right)=\arg\left[\frac{r_{01,p}+r_{12,p}\exp(-i2\beta)}{1+r_{01,p}\,r_{12,p}\exp(-i2\beta)}\Big/\frac{r_{01,s}+r_{12,s}\exp(-i2\beta)}{1+r_{01,s}r_{12,s}\exp(-i2\beta)}\right], \tag{11b}$$

式中，

$$r_{01,p}=\frac{N_1\cos\theta_0-N_0\cos\theta_1}{N_1\cos\theta_0+N_0\cos\theta_1},\quad r_{01,s}=\frac{N_0\cos\theta_0-N_1\cos\theta_1}{N_0\cos\theta_0+N_1\cos\theta_1}, \tag{11c}$$

$$r_{12,p}=\frac{N_2\cos\theta_1-N_1\cos\theta_2}{N_2\cos\theta_1+N_1\cos\theta_2},\quad r_{12,s}=\frac{N_1\cos\theta_1-N_2\cos\theta_2}{N_1\cos\theta_1+N_2\cos\theta_2}, \tag{11d}$$

$$N_0\sin\theta_0=N_1\sin\theta_1=N_2\sin\theta_2,\quad \beta=2\pi d\,N_1\cos\theta_1/\lambda, \tag{11e}$$

式中 N_0 为空气层的折射率，薄膜材料 N_1 和基底材料 N_2 已知。根据折射定律等相关定律，样品椭偏参数 Ψ、Δ 可表示为入射角 θ_0 和样品厚度 d 的函数。

当样品的材料已知，联合(8)～(11)式，傅里叶系数 α_2'，β_2'，α_4'，β_4'可表示为未知校准参数 P，A，C_S，d_c，θ_0 和样品厚度 d 的函数，简写为

$$(\alpha_2',\beta_2',\alpha_4',\beta_4')=f(P,A,C_S,d_c,\theta_0,d). \tag{12}$$

(12)式即为需要的校准函数(使用样品校准法对系统进行校准时，厚度 d 应是已知的)，且该方程组有 4 个方程，5 个未知参数。

样品校准法应用于单波长椭偏仪中[1]，至少需要两个不同厚度的样品对系统进行校准。而在光谱椭偏仪中，每个样品都对应足够多的已知方程，所以只需一个厚度的样品就可以解出系统中的所有未知校准参数。然而，由于单个样品的厚度非均匀性和准确性等误差会对系统的校准造成较大影响，而且不同样品对应不同的椭偏参数{Ψ，Δ}，导致对每个未知参数的灵敏性也不相同。此外，这些校准参数具有很大的相关性。所以在实际校准过程中，采用多个不同厚度的样品校准系统，以消除其相关性[17]并减少样品误差，得到更准确的校准参数。

3.2　样品校准法的算法实现

使用样品校准法对光谱椭偏系统进行校准时，在算法上定义多波长多样品的误差评价函数

$$\chi^2=\sum_{i=1}^{N}\left\{\sum_{j=1}^{M}[(\alpha_{2ij}'-\alpha_{2ij}^{th})^2+(\beta_{2ij}'-\beta_{2ij}^{th})^2+(\alpha_{4ij}'-\alpha_{4ij}^{th})^2+(\beta_{4ij}'-\beta_{4ij}^{th})^2]\right\}, \tag{13}$$

式中 i 表示不同的样品，j 表示不同的波长；$(\alpha'_{2ij}, \beta'_{2ij}, \alpha'_{4ij}, \beta'_{4ij})$ 表示实验采集的第 i 个样品对应第 j 个波长下的归一化傅里叶系数；$(\alpha^{th}_{2ij}, \beta^{th}_{2ij}, \alpha^{th}_{4ij}, \beta^{th}_{4ij})$ 是通过建立一定光学模型计算得到的理论傅里叶系数，表示为 $P, A, C_S, d_c, \theta_0, d$ 的函数，如(12)式所示。M 为波长的总数，N 为样品的总数。

采用最小二乘法原理拟合实验数据 $(\alpha'_{2ij}, \beta'_{2ij}, \alpha'_{4ij}, \beta'_{4ij})$ 和理论数据 $(\alpha^{th}_{2ij}, \beta^{th}_{2ij}, \alpha^{th}_{4ij}, \beta^{th}_{4ij})$，由于 $(\alpha^{th}_{2ij}, \beta^{th}_{2ij}, \alpha^{th}_{4ij}, \beta^{th}_{4ij})$ 式中的 P, A, C_S, d_c, θ_0 均作为可变参数，算法实现时，先给这些参数赋初始值，然后采用 L-M 算法[18]求解 χ^2 的最小值，使理论数据不断逼近实验数据，当误差评价函数 χ^2 在允许的容限范围内算法停止迭代，则最后一次迭代得到的参数就是该系统的校准参数。另外，使用样品校准算法校准系统时，定义了曲线拟合优度函数：

$$f_{\text{goodness}} = \left[1 - \sqrt{\sum_{i=1}^{N}\left\{\sum_{j=1}^{M}\left[(\alpha'_{2ij}-\alpha^{th}_{2ij})^2 + (\beta'_{2ij}-\beta^{th}_{2ij})^2 + (\alpha'_{4ij}-\alpha^{th}_{4ij})^2 + (\beta'_{4ij}-\beta^{th}_{4ij})^2\right]\right\}/(M\times N)}\right]\times 100. \tag{14}$$

通过观察曲线的拟合优度函数值可评价拟合结果。当无法获得良好的拟合度时，可能存在初始值设置偏差过大或实验测量数据有误的问题。

4 样品校准法可行性的模拟验证

前面对样品校准法进行了详细的描述，包括推导和算法实现。本节将对样品校准法进行模拟分析，在理论上对该方法进行验证。

4.1 模拟系列样品的实验傅里叶系数

在进行模拟分析过程中，通过建立一定的光学物理模型，设定 $P = 45°$，$A = 10°$，$C_S = 25°$，$d_c = 7.3\ \mu m$，$\theta_0 = 60°$，通过理论公式分别模拟得到样品厚度 d 为 100、200、300、400、500 nm 的归一化傅里叶系数。

4.2 多种样品合的校准参数

将模拟得到的傅里叶系数作为实验数据，采用多组包含两个不同厚度的样品组合对系统进行校准(固定样品厚度 d_1 和 d_2)，其校准后的参数如表 1 所示。

表 1 样品校准法在采用多组样品组合情况下的模拟结果

Table 1 Simulation results of different grouping samples using sample-calibration method

Sample thicknesses d_1, d_2/nm	P /(°)	A /(°)	C_S/(°)	d_c/μm	θ_0/(°)
100,200	45	10	25	7.3	60
200,300	45	10	25	7.3	60
300,400	45	10	25	7.3	60
400,500	45	10	25	7.3	60
500,100	45	10	25	7.3	60

从表 1 中可以看出，分别采用两个不同的样品对系统进行校准，均可得到准确的校准参数。值得说明的是，样品校准法在算法实现时，需要大致地给定 P、A、C_S、d_c、θ_0 的初始值，并且这些初始值不能与真实值相差太远，否则迭代算法可能陷入局部最小值，从而无法得到正确的校准值。

4.3 使用校准参数计算样品厚度

将上述校准得到的参数值作为系统参数，且将模拟得到的傅里叶系数作为已知数据，分别计算不同样品的厚度，得到的样品厚度如表 2 所示。

表 2 使用校准参数计算不同样品的厚度

Table 2 Thicknesses of different samples using calibration parameters

Thickness	Value				
Sample /nm	100	200	300	400	500
Simulation /nm	100	200	200	400	500

从表 2 可以看出，将样品校准法校准出的系统参数作为实验的系统参数，均能得到与标准样品完全一致的厚度值，证明采用标准样品校准系统在原理上是可行的，并且不会出现单波长椭偏仪中的多解情况[1]。这是因为在单波长椭偏仪的校准过程中，对单一波长 λ 而言，$\exp(-i2\beta) = \exp(-i4\pi d N_1 \cos\theta_1/\lambda)$ 表现为厚度 d 的周期性函数，并且该厚度周期 d_T 可通过 $d_T = n\lambda/2N_1\cos\theta_1$，$n = 1, \cdots, N$ 计算得出。而在

光谱椭偏仪的校准中，表现为多个不同波长，$\exp(-i2\beta)$不再是厚度 d 的周期性函数，由此得到的样品厚度也是唯一的。

5　实验应用和结果

本节将所述样品校准方法应用于 PSC_RA 深紫外(DUV)椭偏系统，实现实验验证，实验平台如图 2 所示。图中，1 为光源，光谱范围为 200～1000 nm；2、9 为 30°离轴抛物面镜，用于产生或聚焦准直光束；3、8 分别为起偏器和检偏器，分别用于产生和检测线偏振光；4、6 为全反射式聚焦(准直)光学系统，均由 30°离轴抛物面镜和其配对的平面镜组成，用来将准直光束聚焦为小光斑(光斑大小为 36 μm×49 μm)或将小光斑准直为平行光束。全反射聚焦系统中的离轴抛物面镜和平面镜对采用相同的镀膜材料，两镜子主光线等角小角入射并且入射平面正交，以保持相同的偏振态；5 为已知或待测样品；7 为零级波片(MgF_2 材料)，用于补偿不同波长的相位变化，波片采用伺服电机控制其旋转；10 为 Ocean optics Maya 2000 Pro 光谱仪，用于接收或采集光强数据；11 为外部触发电路，触发光谱仪采集数据，使光谱仪在一个光学周期内采集 8 次，得到对应的积分光强。

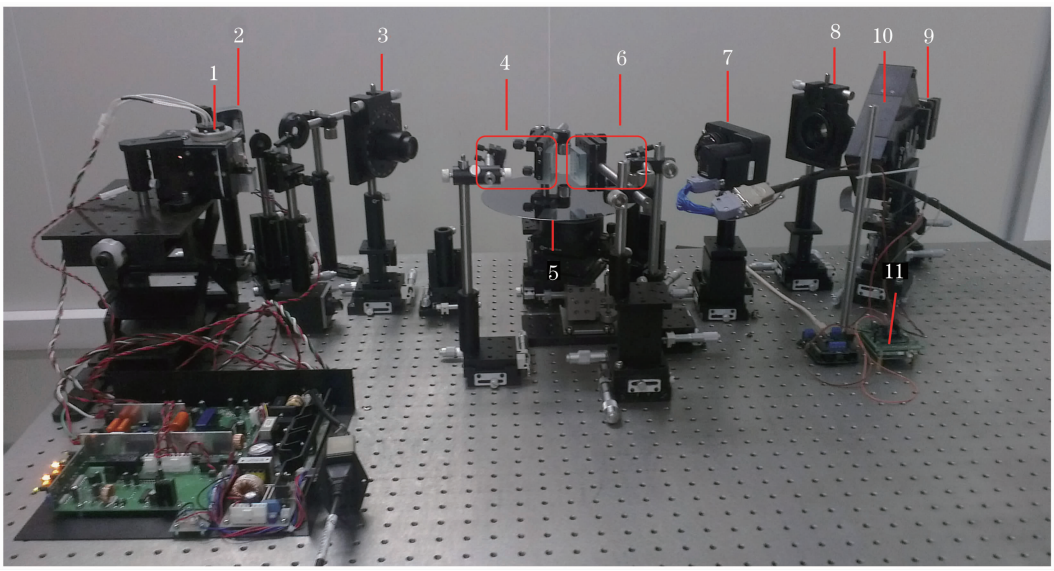

图 2　PSC_RA 深紫外光谱椭偏系统

Fig. 2　DUV spectroscopic ellipsometry system based on PSC_RA

值得说明的是，使用标准样品校准法校准系统，对参与校准的样品厚度和材料要求较好的一致性和均匀性，且样品的材料必须已知。要获得高要求高标准的样品，可采用国际上公认的商业标准样品，如经美国国家标准计量研究所(NIST)认证的标准样品，但由于价格过于昂贵而不予采用。实际校准时，采用订制的不同厚度 SiO_2/Si 样品，并使用多个不同厚度的样品对系统进行校准，以减少由于单个样品厚度偏差较大和样品非均匀性所带来的误差并消除各校准参数的关联性。

实验中，通过多次测量 3 个不同厚度(3.036、8.939、12.960 nm)的 SiO_2/Si 样品(材料已知)，采集周期性光强信号从而得到不同样品的归一化实验傅里叶系数。使用样品校准算法对实验数据进行迭代拟合，多次校准的参数见表 3 所示。表 3 中 Std、Rsd 分别为各参数的标准偏差和相对标准偏差。

从表 3 中看出，使用多个标准薄膜样品校准系统的重复性良好，且各校准参数的角度标准偏差均在 0.01°左右，相对标准偏差在 0.05%左右。由于不同波长的光对薄膜样品的敏感性不同，如较薄的薄膜样品对紫外光非常敏感，而对可见光及近红外光的敏感性不够，所以在使用比较薄的薄膜样品校准系统时，必须包含紫外波段，否则在拟合傅里叶系统光谱时，容易导致校准的系统参数与实际参数偏差较大。

此外，实验采用的标准样品可能由于制造工艺的不稳定性等因素，导致薄膜样品表面状态[19]及厚度具有非均匀性。对同一样品的不同测量点，样品厚度的非均匀性差异会影响整个系统的校准参数及测量结果。当样品厚度均匀性均在±0.3 nm 内变化时，对校准参数和测量的影响如表 4 所示。表 4 中 P、A、d_c、θ_0、C_S 为使用不同样品不同均匀性状态下校准得到的系统参数，δ_a、δ_b、δ_c、δ_d 分别为对应校准参数下测量不同厚度样品与参考厚度的误差，样品参考厚度如表 5 所示。

表 3 使用多样品校准得到的校准参数

Table 3 Calibration parameters using multi-sample calibration method

Parameter	P /(°)	C_s/(°)	A /(°)	d_c/μm	θ_0/(°)
1	45.130690	95.421606	116.552410	7.326206013	61.46
2	45.129523	95.422035	116.574444	7.325193474	61.46
3	45.140368	95.405080	116.541979	7.323687309	61.46
4	45.139795	95.409383	116.534249	7.322261841	61.46
5	45.142553	95.410890	116.554448	7.320685767	61.45
6	45.142912	95.405388	116.545825	7.319476993	61.45
7	45.142941	95.403804	116.534383	7.318321674	61.45
8	45.136962	95.421897	116.570321	7.317081211	61.44
9	45.147808	95.403183	116.539756	7.316036022	61.44
10	45.146555	95.411977	116.545993	7.315026254	61.44
Average	45.1400107	95.4115243	116.5493808	7.320397656	61.451
Std /[(°)/μm]	0.005774334	0.007302495	0.013141378	0.003676259	0.008306624
Rsd /%	0.012792052	0.007653682	0.011275374	0.050219395	0.013517475

表 4 样品厚度非均匀性对校准参数和测量的影响

Table 4 Effect of non-uniformity of sample thickness on calibration parameters and measurement

Sample	U /(10^{-10} m)	P /(°)	C_S/(°)	A /(°)	d_c/μm	θ_0/(°)	δ_a/(10^{-10} m)	δ_b/(10^{-10} m)	δ_c/(10^{-10} m)	δ_d/(10^{-10} m)
a	−3	45.134410	95.157998	116.293513	7.322938488	61.85	2.36	2.73	3.5	4.26
	−2	45.135320	95.244660	116.380987	7.322098571	61.72	1.58	1.82	2.34	2.86
	−1	45.137195	95.329104	116.466243	7.321276981	61.58	0.79	0.91	1.17	1.43
	0	45.140011	95.411524	116.549381	7.320397656	61.45	0	0	0	0
	+1	45.143732	95.491908	116.630435	7.319501188	61.32	0.79	0.91	1.17	1.43
	+2	45.148284	95.570334	116.709486	7.318594060	61.19	1.58	1.83	2.35	2.86
	+3	45.153734	95.646744	116.786436	7.317664989	61.06	2.35	2.71	3.48	4.21
		↑	↑	↑	↓	↓				
b	−3	45.091424	95.230849	116.367872	7.323140246	61.80	2.13	2.46	3.18	3.9
	−2	45.107108	95.292467	116.429783	7.322241574	61.68	1.42	1.64	2.12	2.
	−1	45.123306	95.352738	116.490330	7.321313735	61.57	0.71	0.82	1.06	1.3
	0	45.140011	95.411524	116.549381	7.320397656	61.45	0	0	0	0
	+1	45.157177	95.468949	116.607072	7.319473692	61.33	0.71	0.82	1.06	1.3
	+2	45.174822	95.525089	116.663410	7.318497334	61.22	1.41	1.64	2.11	2.58
	+3	45.192892	95.579831	116.718366	7.317557040	61.10	2.13	2.47	3.19	3.91
		↑	↑	↑	↓	↓				
c	−3	45.043292	95.330426	116.468632	7.323007875	61.72	1.69	2.17	2.56	3.17
	−2	45.075244	95.358319	116.496398	7.322143652	61.63	1.13	1.31	1.71	2.12
	−1	45.107479	95.385389	116.523351	7.321278479	61.54	0.56	0.66	0.85	1.06
	0	45.140011	95.411524	116.549381	7.320397656	61.45	0	0	0	0
	+1	45.172839	95.436671	116.574433	7.319525758	61.36	0.58	0.67	0.88	1.09
	+2	45.205975	95.460890	116.598576	7.318637757	61.28	1.09	1.27	1.66	2.06
	+3	45.239403	95.484062	116.621652	7.317756806	61.19	1.69	1.96	2.56	3.17
		↑	↑	↑	↓	↓				
d	−3	45.001007	95.428593	116.566967	7.322618264	61.64	1.3	1.52	2	2.52
	−2	45.046887	95.423974	116.562150	7.321886327	61.57	0.86	1.01	1.33	1.68
	−1	45.093204	95.418317	116.556329	7.321150292	61.51	0.42	0.49	0.64	0.82
	0	45.140011	95.411524	116.549381	7.320397656	61.45	0	0	0	0
	+1	45.187297	95.403592	116.541310	7.319646591	61.39	0.43	0.5	0.66	0.84
	+2	45.235095	95.394537	116.532097	7.318864910	61.33	0.84	0.98	1.3	1.64
	+3	45.283387	95.384240	116.521717	7.318121534	61.27	1.28	1.5	1.98	2.5
		↑	↓	↓	↓	↓				

表 5　使用校准系统后的测量样品结果

Table 5　Measurement results using the calibrated system

Sample	*a*	*b*	*c*	*d*
Reference /(10^{-10} m)	30.36	49.66	89.39	129.60
1	32.25	50.90	89.49	129.68
2	32.26	50.89	89.50	129.79
3	32.22	50.94	89.59	129.78
4	32.30	50.98	89.55	129.75
5	32.29	50.97	89.52	129.68
Average /(10^{-10} m)	32.264	50.936	89.53	129.736
Max absolute /(10^{-10} m)	1.94	1.32	0.20	0.19
Max relative /%	6.389986825	2.658074909	0.223738673	0.146604938
Std /(10^{-10} m)	0.0287054	0.03611094	0.036331804	0.047581509
Rsd /%	0.08897037	0.070894731	0.040580592	0.036675641
Goodness /%	99.61034	99.62528	99.62772	99.58492

从表 4 中可知，分别使用单个薄膜样品校准系统参数，样品厚度的非均匀性对系统校准参数的影响，表现为随着样品均匀性误差一致性增加时，系统各校准参数均近似呈线性变化。实验中还发现，使用单个不同厚度的标准样品，校准的某些参数呈现相反变化趋势，其具体原因可分析为，样品厚度的差异影响相位厚度 β，使得 $\exp(-\mathrm{i}2\beta)$ 虚部的正负号发生变化，从而导致不同样品对应的校准参数呈现相反变化趋势。

标准样品的厚度非均匀性，不仅影响系统校准参数，也相应地的影响系统的测量结果。从表 4 同样可知，当样品存在非均匀性时，不同厚度样品校准的系统其对应测量误差也不尽相同，样品厚度越薄，样品测量的敏感性越差，其对应的测量误差也就越大。

以表 3 中多样品校准中第 5 次测量的数据为参考，计算当参与校准的 3 个样品的厚度均一致性变化（±0.5 nm 内）时，对系统校准参数的影响，其结果如图 3 所示。

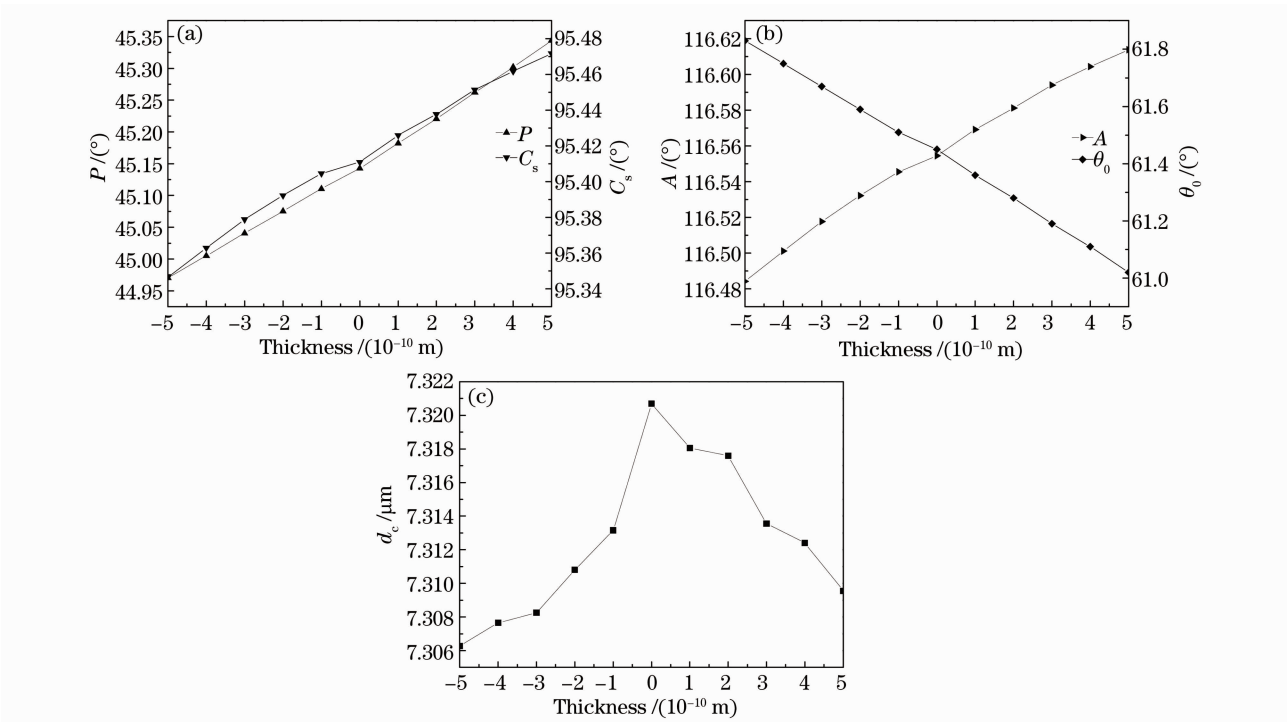

图 3　参与校准的样品厚度一致性变化对系统校准参数的影响

Fig. 3　Effect of coincident change of sample thickness on calibration parameters

使用多个标准样品校准系统，系统各校准参数也近似呈线性变化，且相对变化较小，即多个样品同时变化±0.5 nm，除入射角的校准参数最大变化为0.2°左右之外，其他的均小于0.1°。实际样品的厚度非均匀性应远远小于±0.5 nm，其对应的校准参数将远远小于0.2°。图3中参数 d_c 的变化不呈线性关系，是因为多个样品参与校准，系统参数的变化表现为多个样品综合后的结果。此处给出的是参与校准的多个样品同时变化相同的厚度对校准参数的影响，这样得出的参数会比实际校准的参数大。实际校准中，由于样品的厚度非均匀性误差不可能同时增大或减小0.5 nm，当多个样品的非均匀性相对真实厚度出现相反变化时，对系统的校准参数会有一定的补偿效果，从而使系统的校准参数更接近真实值。

表5列出了利用校准后的系统多次测量不同厚度 SiO_2/Si 样品的实验结果，其对应的某次测量的拟合曲线如图4所示。其中，表5中 Reference 为 Horiba UVISEL2 光谱椭偏仪测量的参考厚度值，数字1、2、3、4、5对应数据则是利用校准后的椭偏系统多次测量的厚度值。

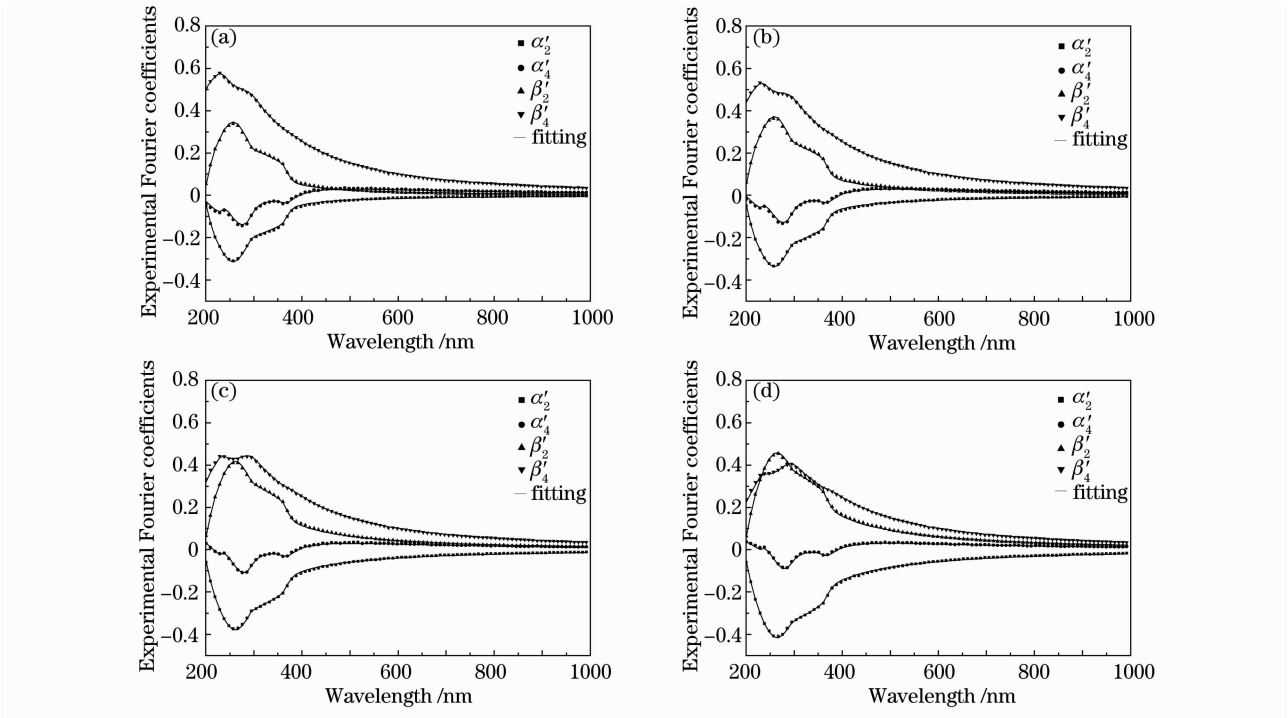

图4 参考厚度分别为(a) 30.36、(b) 49.66、(c) 80.39、(d) 129.59×10^{-10} m 的 SiO_2/Si 样品曲线拟合结果

Fig. 4 Fitting results of reference thicknesses of (a) 30.36, (b) 49.66, (c) 80.39, (d) 129.60×10^{-10} m SiO_2/Si samples

从上面结果可以看出，使用标准样品校准后的椭偏系统测量不同厚度的 SiO_2/Si 样品，经分析后的结果与 Horiba UVISEL2 光谱椭偏仪测量的结果吻合，但对于较薄薄膜样品(3～5 nm)，得到的结果与 Horiba 的结果偏差较大，达到0.194 nm。需要说明的是，Horiba UVISEL2 型光谱椭偏仪对较薄薄膜样品的测量本身存在一定的偏差，在使用该椭偏仪测量的实验样品，作为标准样品校准椭偏系统，有可能进一步增大由于 Horiba 测量准确性带来的误差，从而增大两者的偏差。除此之外，不排除样品的非均匀性和实验调整过程中引入的微小误差所带来的影响。实验结果表明，实验数据与理论数据在200～1000 nm 全波段范围内拟合效果良好，且各样品拟合曲线的平均拟合优度几乎都在99.6%以上。

6 结　　论

提出了利用多个标准样品校准光谱椭偏仪的方法，首先从理论上模拟验证了该方法的可行性，然后结合该系统，在实验上验证了该方法的有效性，且取得了较好的实验结果。在使用薄膜样品校准系统时，应根据选用标准样品的不同，充分考虑所用样品对不同波长的敏感性问题，避免因系统的敏感性不够带来的误差。选用标准样品时，应尽量选择厚度均匀性和表面状态较好的样品。该方法具有操作简单、准确、速度快、节约成本等优点，同样适用于其他

结构的椭偏系统，可解决较复杂系统校准困难、复杂的难题。

参 考 文 献

1 Xu Peng, Liu Tao, Wang Linzi, *et al*.. Calibration method for single wavelength ellipsometry using standard samples [J]. Acta Optica Sinica, 2013, 33(4): 0412002.
徐　鹏，刘　涛，王林梓，等. 样品校准法在单波长椭偏仪中的应用[J]. 光学学报，2013，33(4)：0412002.

2 Yuan Zhao, Mingyu Sheng, Yuxiang Zheng, *et al*.. Accurate analysis of ellipsometric data for thick transparent films [J]. Chin Opt Lett, 2011, 9(5): 053101.

3 Zhou Yi, Wu Guosong, Dai Wei, *et al*.. Accurate determination of optical constants and thickness of absorbing thin films by a combined ellipsometry and spectrophotometry approach [J]. Acta Physica Sinica, 2010, 59(4): 2356－2363.
周　毅，吴国松，代　伟，等. 椭偏与光度法联用精确测定吸收薄膜的光学常数与厚度[J]. 物理学报，2010，59(4)：2356－2363.

4 Fan Longfeng, Lin Tianxia, Huang Zuohua. New algorithm to the ellipsometric data inversion of double films [J]. Laser Technology, 2012, 36(5): 589－592.
范龙凤，林天夏，黄佐华. 双层膜椭偏数据处理的新算法[J]. 激光技术，2012，36(5)：589－592.

5 Xu Junqi, Feng Xiaoli. Optical constants of multi-layer thin films investigated by spectroscopic ellipsometry [J]. Opto-Electronic Engineering, 2009, 36(2): 29－33.
徐均琪，冯小利. 多层薄膜光学常数的椭偏法研究[J]. 光电工程，2009，36(2)：29－33.

6 Li Xiaowei, Zhou Yi, Sun Lili, *et al*.. Determination of chemical bond of tetrahedral amorphous carbon films by an ellipsometry approach [J]. Acta Optica Sinica, 2012, 32(10): 1031005.
李晓伟，周　毅，孙丽丽，等. 椭偏法表征四面体非晶碳薄膜的化学键结构[J]. 光学学报，2012，32(10)：1031005.

7 Liu Wende, Chen Chi, Zhang Hang, *et al*.. Effect of glass substrate and surface roughness on ellipsometric measurement of silicon nitride films [J]. Chinese J Lasers, 2012, 39(s1): s107002.
刘文德，陈　赤，张　航，等. 玻璃基底和表面粗糙度在氮化硅薄膜椭偏测量中的影响[J]. 中国激光，2012，39(s1)：s107002.

8 Yang Kun, Wang Xiangzhao, Bu Yang. Research progress of ellipsometer [J]. Laser & Optoelectronics Progress, 2007, 44(3): 43－49.
杨　坤，王向朝，步　扬. 椭偏仪的研究进展[J]. 激光与光电子学进展，2007，44(3)：43－49.

9 D E Aspnes. Effects of component optical activity in data reduction and calibration of rotating-analyzer ellipsometers [J]. J Opt Soc Am, 1974, 64(6): 812－819.

10 J M M de Nijs, A H M Holtslag, A Hoeksta, *et al*.. Calibration method for rotating-analyzer ellipsometers [J]. J Opt Soc Am A, 1988, 5(9): 1466－1471.

11 I An, J Lee, K Y Bang, *et al*.. A single zone azimuth calibration for rotating compensator multichannel ellipsometry [J]. Jpn J Appl Phys, 2003, 42: 2872－2875.

12 I An, J Lee, B Hong, *et al*.. Simultaneous determination of reflectance spectra along with $\{\Psi(E), \Delta(E)\}$ in multichannel ellipsometry: applications to instrument calibration and reduction of real-time data [J]. Thin Solid Films, 1998, 313: 79－84.

13 J Lee, P I Rovira, I An, *et al*.. Rotating-compensator multichannel ellipsometry: applications for real time Stokes vector spectroscopy of thin film growth [J]. Rev Sci Instrum, 1998, 69(4): 1800－1810.

14 H Fukiwara. Spectroscopic Ellipsometry: Principles and Applications [M]. Chichester: John Wiley & Sons, Ltd, 2007. 1－360.

15 H G Tompkins, E A Irene. Handbook of Ellipsometry [M]. Berlin: Springer, 2005. 1－855.

16 Marilyn J Dodge. Refractive properties of magnesium fluoride [J]. Appl Opt, 1984, 23(12): 1980－1985.

17 Zhou Yi, Wang Aiying. Determination of optical constants and thickness of diamond-like carbon films by a multiple sample method [J]. Acta Optica Sinica, 2010, 30(8): 2467－2472.
周　毅，汪爱英. 多样品法确定类金刚石薄膜的光学常数与厚度[J]. 光学学报，2010，30(8)：2467－2472.

18 D Marquardt. An algorithm for least-squares estimation of nonlinear parameters [J]. SIAM J Appl Math, 1963, 11(2): 431－441.

19 Sun Ping, Guo Ping. Influence of the appearance and deposition condition of film-sample on the measured result of ellipsometer [J]. Physics Experimentation, 1998, 18(3): 2－9.
孙　平，郭　屏. 薄膜样品的表面状态及制备条件对椭偏仪测量结果的影响[J]. 物理实验，1998，18(3)：2－9.

栏目编辑：韩　峰