

光谱型椭偏仪精确表征非晶吸收薄膜的光学常数

李江^{1,2} 李沛³ 黄峰² 魏贤华¹ 葛芳芳² 李朋²

¹西南科技大学材料科学与工程学院, 四川 绵阳 621010

²中国科学院海洋新材料与应用技术重点实验室, 浙江 宁波 315201

³上海大学材料科学与工程学院, 上海 200072

摘要 采用光谱型椭偏仪(SE)和分光光度计分别测量了超薄类金刚石(DLC)薄膜和非晶硅(a-Si)薄膜的椭偏参数(ψ 和 Δ)和透射率 T 。由于薄膜的厚度与折射率、消光系数之间存在强烈的相关性,仅采用椭偏参数拟合,难以准确得到薄膜的光学常数。如果加入透射率同时进行拟合(以下简称SE+T法),可简单、快速得到薄膜的厚度和光学常数。但随机噪声、样品表面的轻微污染或衬底上任何小的吸收都可能影响SE+T法拟合的光学常数的准确性。因此将SE+T法和光学常数参数化法联用,实现DLC、a-Si薄膜光学常数的参数化,以消除测量数据中的噪声对光学常数的影响。结果显示,联用时的拟合结果具有更好的唯一性,而且拟合得到的光学常数变得平滑、连续且符合Kramers-Kronig(K-K)关系。这种方法特别适合于精确表征厚度仅为几十纳米的非晶吸收薄膜的光学常数。

关键词 薄膜;光学常数;吸收薄膜;色散模型;光谱型椭偏仪

中图分类号 O436

文献标识码 A

doi: 10.3788/AOS201535.0431001

Accurate Determination of Optical Constants of Amorphous Absorbing Thin Films by Spectroscopic Ellipsometry

Li Jiang^{1,2} Li Pei³ Huang Feng² Wei Xianhua¹ Ge Fangfang² Li Peng²

¹*School of Materials Science and Engineering, Southwest University of Science and Technology, Mianyang, Sichuan 621010, China*

²*Key Laboratory of Marine New Materials and Related Technology, Chinese Academy of Sciences, Ningbo, Zhejiang 315201, China*

³*School of Materials Science and Engineering, Shanghai University, Shanghai 200072, China*

Abstract Spectroscopic ellipsometry (SE) and spectrophotometer are used to measure the ellipsometric parameters (ψ and Δ) and transmittance of ultrathin diamond like carbon (DLC) film and amorphous silicon (a-Si) film respectively. Accurate determination of optical constants and thickness of DLC film and a-Si film is a difficult problem when ellipsometric parameters are used independently. It is due to the strong statistical correlation which exists between the optical constants and thickness of the film when these parameters are adjusted to fit the experimental ellipsometric parameters. By simultaneous fitting ellipsometric parameters and transmittance (SE+T), thickness and optical constants can be obtained easily and rapidly. However, noise, minor contamination on the film surface or any small absorption in the substrate will be mixed into the film's optical constants. In order to determine the optical constants of ultrathin DLC and a-Si film accurately, the optical constants are parameterized by combining SE+T and optical constant parameterization approach. The results show that the adopted method is able to uniquely and accurately measure optical constants from a unique solution while maintaining smooth, continuous, and often Kramers-Kronig (K-K) consistent optical properties for the ultrathin DLC film and a-Si film.

收稿日期: 2014-10-29; 收到修改稿日期: 2014-12-08

基金项目: 电子薄膜与集成器件国家重点实验室开放课题 (KFJJ210307)

作者简介: 李江(1987—),男,硕士研究生,主要从事薄膜光学性质方面的研究。E-mail: lijiaang@nimte.ac.cn

导师简介: 魏贤华(1976—),男,博士,教授,主要从事功能薄膜方面的研究。E-mail: weixianhua@swust.edu.cn

(通信联系人)

This method is expected to be of value for optical property measurement of other amorphous films with thickness of just a few tens of nanometers.

Key words thin films; optical constants; absorbing films; dispersion model; spectroscopic ellipsometry

OCIS codes 310.6860; 240.2130; 240.0310; 070.4790

1 引 言

薄膜的厚度和光学常数的准确测量在薄膜应用和研究领域具有重要的意义。椭偏仪具有无损非接触、高灵敏度、高精度等优点,即使常规的椭偏仪也可以获得较高的厚度灵敏度(0.01 nm)^[1]。但椭偏仪需要借助计算机拟合的方法才能求解出薄膜的厚度 d 及光学常数(折射率 n 、消光系数 k)。由于吸收薄膜的厚度与光学常数之间存在强烈的相关性,因而难以得到光学常数的准确解。而这种相关性取决于薄膜的结构和拟合方法^[2]。多样品分析法^[3-4]、干涉加强法^[5-6]、光学常数参数化法^[7-8](通过色散方程实现光学常数的参数化)以及同时拟合椭偏参数(ψ 和 Δ)和透射率法^[9-10](以下简称 SE+T 法)等拟合方法,通过减少拟合量或者增加额外限制条件来获取吸收薄膜的厚度和光学常数的准确解。但上述方法均存在局限性^[2],多样品分析法要求被测薄膜的光学性质不随厚度变化;干涉加强法需要在吸收薄膜下层预先沉积一层透明薄膜,而透明薄膜的厚度直接影响测量的准确性;SE+T法利用 T 、 ψ 、 Δ 三个方程直接拟合得到薄膜的 n 、 k 、 d 值^[11-12],但直接拟合时,随机噪声、薄膜表面的轻微污染或衬底上任何小的吸收都有可能影响 n 、 k 值的准确性,而且 SE+T 法拟合得到的 n 、 k 并不遵循 Kramers-Kronig (K-K)关系,结果可能不合理。当薄膜的 n 、 k 未知时,难以通过光学常数参数化法精确描述薄膜的光学性质。Hilfiker 等^[2]指出,当光学常数参数化法和其他拟合方法联合使用时,不仅可以使拟合得到的光学常数具有合理的色散关系,而且还可进一步提高拟合方法的灵敏度。鉴于此,本文建立了一种光学常数参数化法和 SE+T 法联合表征非晶吸收薄膜光学性质的方法。

2 基本理论

2.1 椭偏测量及拟合

光谱椭偏(SE)通过测量从被测样品反射或透射的电磁波偏振态的改变,求出平行于入射面的 p 偏振光和垂直于入射面的 s 偏振光的菲涅耳反射系数(分别用 r_p 和 r_s 表示)比值 ρ ,它由空气的折射率 n_0 ,衬底的光学常数(n_s 、 k_s)以及薄膜的厚度 d_f 和光学常数(n_f 、 k_f)决定,可表示为

$$\rho = \frac{r_p}{r_s} = \tan \psi \exp(i\Delta) = f(n_0, n_f, k_f, d_f, n_s, k_s), \quad (1)$$

式中 ψ 、 Δ 为椭偏参数,分别表示 p 偏振光和 s 偏振光的振幅衰减比和相位差,由椭偏仪直接测量得到,可表示为

$$\psi = \arctan\left(\left|\frac{r_p}{r_s}\right|\right), \quad (2)$$

$$\Delta = \delta_p - \delta_s, \quad (3)$$

式中 δ_p 、 δ_s 分别为 p、s 偏振光的相位。(2)式和(3)式一般称为椭偏方程。因为 n_0 和 n_s 、 k_s 已知,椭偏方程实际只有 d_f 、 n_f 、 k_f 三个未知量。本文采用的光谱型椭偏仪能同时测量 714 个波长点下的椭偏参数,假设同时选择 M ($M < 714$) 个波长点下的椭偏参数进行拟合,则可得到 $2M$ 个椭偏方程,未知参数有 M 个波长下的 n_f 和 k_f 以及薄膜厚度 d_f ,共 $2M+1$ 个,如果加入透射率 T 进行拟合,则方程数为 $3M$ 个,可大大降低计算的难度。但椭偏方程是复杂的超越方程,即使是 $k_f=0$ 的透明薄膜也无法得到其解析解,因此描述入射光源与空气/薄膜/衬底的相互作用的光学模型被用于复杂的逆向数据分析。光学响应(ψ 、 Δ 、 T)可以由任何光学模型产生,通过回归分析,当建立的光学模型产生的 ψ 、 Δ 、 T 与直接测量的 ψ 、 Δ 、 T 接近时,薄膜的 d_f 、 n_f 、 k_f 被找到。最小均方误差(MSE)用于衡量拟合程度的优劣,MSE 越小,计算值与测量值越接近,所得的结果就越可信。MSE 定义为

$$f_{\text{MSE}}^2 = \frac{1}{2N - M} \sum_{i=1}^N \left[\left(\frac{\psi_i^{\text{mod}} - \psi_i^{\text{exp}}}{\delta_{\psi,i}^{\text{exp}}} \right)^2 + \left(\frac{\Delta_i^{\text{mod}} - \Delta_i^{\text{exp}}}{\delta_{\Delta,i}^{\text{exp}}} \right)^2 \right], \quad (4)$$

式中 mod、exp 分别表示拟合值和测量值, δ 为测量误差, N 为椭偏仪同时测量的 ψ 、 Δ 的总对数, M 为所选取

拟合参数的对数。如果加入 T 进行同时拟合, 则 MSE 修正为

$$f_{\text{MSE}}^2 = \frac{1}{2N - M} \sum_{i=1}^N \left[\left(\frac{\psi_i^{\text{mod}} - \psi_i^{\text{exp}}}{\delta_{\psi,i}^{\text{exp}}} \right)^2 + \left(\frac{\Delta_i^{\text{mod}} - \Delta_i^{\text{exp}}}{\delta_{\Delta,i}^{\text{exp}}} \right)^2 + \left(\frac{T_i^{\text{mod}} - T_i^{\text{exp}}}{\delta_{T,i}^{\text{exp}}} \right)^2 \right]. \quad (5)$$

2.2 Tauc-Lorentz(TL)振子模型

光学常数参数化法通过色散方程实现光学常数的参数化以减少未知参数的数目^[7,13]。对于吸收薄膜, 色散公式必须要同时描述介电常数实部 $\varepsilon_1(\lambda)$ 和虚部 $\varepsilon_2(\lambda)$ 。然而 $\varepsilon_1(\lambda)$ 和 $\varepsilon_2(\lambda)$ 并非独立, 而是符合 K-K 关系。由于薄膜在不同的波长段光学性质可能不同, 因此用色散方程描述薄膜的光学性质时, 可能会用到多个振子项模型。如 Drude 振子模型主要用于描述薄膜的自由载流子效应, Lorentz 振子模型用于描述薄膜的光子吸收。许多振子模型强制 $\varepsilon_1(\lambda)$ 和 $\varepsilon_2(\lambda)$ 遵循 K-K 关系, 以进一步减少未知数的个数, 同时使拟合得到的光学常数更加合理。

Tauc-Lorentz 振子模型是 Jellison 等^[8]基于 Tauc 联合态密度^[14]和 Lorentz 振子模型提出的, 用于描述非晶态薄膜的光学性质, 它以 K-K 关系为基础。如果只考虑单个跃迁(振子)的情况, TL 振子模型介电常数虚部 ε_2 可表示为

$$\varepsilon_{2\text{TL}}(E) = \begin{cases} \frac{AE_0C(E - E_g)^2}{(E^2 - E_0^2) + C^2E^2} \cdot \frac{1}{E}, & E > E_g \\ 0, & E \leq E_g \end{cases}, \quad (6)$$

由 K-K 关系式可得出其介电常数实部 ε_1 为

$$\varepsilon_1(E) = \varepsilon_1(\infty) + \frac{2}{\pi} P \int_{E_g}^{\infty} \frac{\xi \varepsilon_2(\xi)}{\xi^2 - E^2} d\xi, \quad (7)$$

式中 P 为积分的柯西主值, 薄膜的光学常数由 $A, C, E_0, E_g, \varepsilon_1(\infty)$ 5 个参数决定, A 为 Tauc 系数与 Lorentz 振荡峰的乘积, C 为振荡峰宽度系数, E_0 为振荡峰中心能量, E_g 为光学带隙, $\varepsilon_1(\infty)$ 为高频介电常数。

3 实验方法

3.1 样品制备

超薄类金刚石薄膜(DLC)采用自主研发的 45° 双弯曲磁过滤阴极真空电弧(FCVA)技术沉积, 电弧阴极为圆梯形状的固体石墨靶(纯度为 99.99%), 电弧电流控制在 60 A, 碳离子的入射角度为 60° 。衬底为 0.7 mm 的石英玻璃, 沉积前用去离子水、丙酮和无水乙醇超声波清洗后, 再用高纯 N_2 吹干, 放入沉积室内基片托上, 待腔体真空度达到 2.36×10^{-3} Pa 时, 通入流量为 20 mL/min(标准状态)的 Ar, 在 -400 V 的偏压下对样品刻蚀 5 min, 然后对衬底交替施加 -80 V 和 -140 V 偏压进行薄膜沉积, 沉积时间为 10 min。

采用北京科学仪器公司加工制造的 MSP-4200B 型磁控溅射设备制备非晶硅(a-Si)薄膜, Si 靶纯度为 99.9%。衬底为载波片(浮法玻璃, 厚度为 1 mm)。沉积前用丙酮、无水乙醇和去离子水超声波清洗后, 再用高纯 N_2 吹干后放入沉积室内基片托上。当沉积室的背底真空低于 3×10^{-3} Pa 时, 通入流量为 30 mL/min 的 Ar 气, 调节沉积气压为 0.5 Pa, 基板温度为 100°C 。采用直流电源起辉, 功率为 80 W, 沉积时间为 10 min。

3.2 测试方法

椭圆测试采用美国 Woollam 公司生产的 M-2000DI 可变入射角光谱型椭圆偏仪(VASE), ψ 与 Δ 精度优于 0.015° , 波长范围为 190~1700 nm, 共 714 个波长通道。数据分析采用仪器自带的 WVASE32 软件, 该软件允许以反射模式进行多角度(实验选用 $55^\circ, 65^\circ$ 和 75° 为入射角)分析, 也可导入反射率或透射率进行联合拟合分析。透射率(垂直入射时)测量采用美国 Perkin Elmer 公司的 Lambda 950 型紫外/可见/近红外分光光度计, 石英、载玻片衬底测量范围为 190~1700 nm, DLC 薄膜的测量波长范围为 200~1700 nm, a-Si 薄膜的测量波长范围为 300~1200 nm。扫描步长均为 1 nm。

4 准确获取衬底光学常数

准确获取衬底的光学常数是采用椭圆偏仪精确测定薄膜光学常数的前提。由于制造工艺、结晶度、杂质、

缺陷、气泡等的影响,即使同种衬底的光学常数(主要是消光系数)也会存在差异^[15]。而采用SE+T法拟合吸收薄膜的光学常数时,衬底上任何小的吸收都会在薄膜的光学常数中表现出来^[2]。因此本文未采用WAVSE32自带的石英及载玻片的光学常数,而是采用椭偏仪和分光光度计联合测定两者的光学常数。

从图1(a)椭偏仪测量的光路示意图可以看出,从透明衬底背面反射的非相干光(背反)会和相干光束^[16-17]一起进入探测器,而背反的相位信息丢失,会干扰测量结果。目前一般采用对衬底背面进行打磨/喷砂处理(背底粗糙)的方式^[1,18]抑制背反,但此法需要使用专用工具且不适用于较薄、易碎、柔软的衬底,即使成功消除背反也会以破坏衬底作为代价。

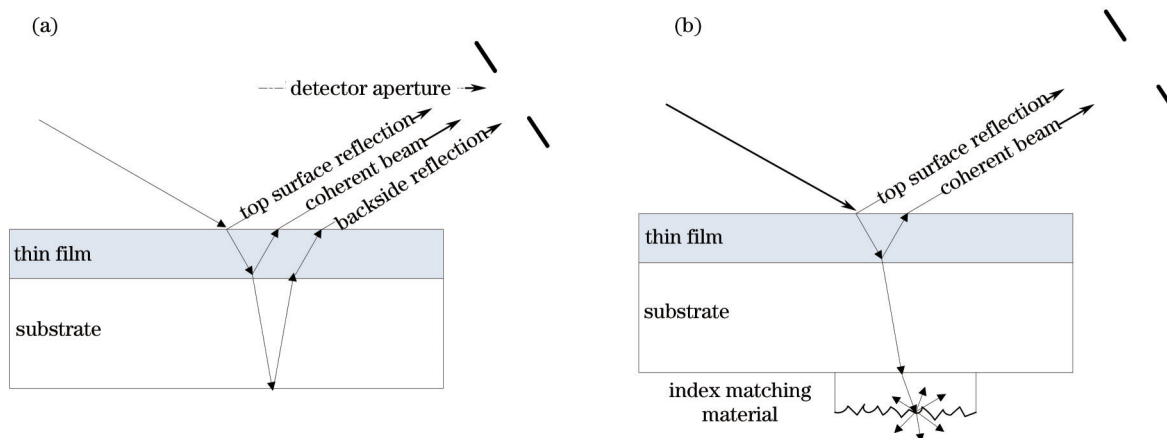


图1 椭偏测量光路示意图。(a)衬底背反;(b)使用折射率匹配技术消除衬底背反

Fig.1 Schematic of measuring optical path of ellipsometry. (a) Reflection from backside of the substrate; (b) suppressing backside reflection from transparent substrate via index matching technique

折射率匹配技术作为一种非破坏性技术,如图1(b)所示,它是通过在衬底背面使用一种与衬底背面形成折射率匹配的材料,使测量光进入该匹配材料中并使该光散射掉以消除背反。2004年Hayton等^[19]在浮法玻璃背面使用蓝丁胶有效抑制了该玻璃在250~850 nm波段背反的影响。2008年Synowicki等^[20]在前者的基础上对折射率匹配技术进行了推广,可以作为折射率匹配材料的材料众多,如透明胶带、指甲油、防晒霜、黑墨水、硅胶、凡士林、白乳胶等,当然选择不同材料获得的背反消除的效果也不同,本文选择普通的带磨砂的透明胶带作为折射率匹配材料,椭偏仪测量前仅需将该透明胶带平整地贴在待测衬底背面即可。

采用椭偏仪测量了石英、载玻片在190~1700 nm范围内的折射率。考虑到以上透明衬底表面并非理想的光滑平面,拟合时采用由表面粗糙层(50%空隙+50%衬底)/衬底层组成的两层物理模型,粗糙层和衬底层分别采用Bruggeman有效介质近似(BEMA)理论^[21-23]和带有Urbach吸收的Cauchy模型处理。图2所示为椭偏仪测得的分别采用背底粗糙和折射率匹配技术消除背反后的石英玻璃和载玻片的折射率,可以看出两种方法得到的结果在紫外、可见光区趋于一致,仅在近红外区有少许差别。

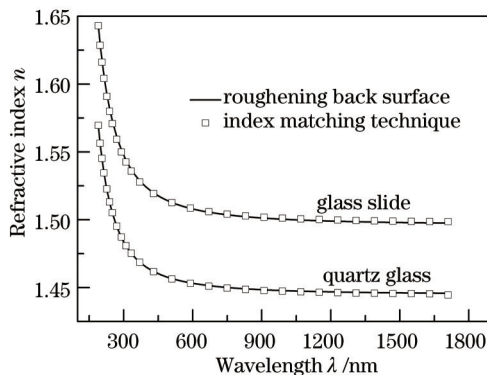


图2 分别采用背底粗糙和折射率匹配技术两种方法消除背反后的载玻片和石英玻璃的折射率

Fig.2 Refractive index of glass slide and quartz glass derived from ellipsometric data with backside reflections suppressed by roughening the back surface and using the index matching technique respectively

透明衬底的消光系数 k_λ 可以表示为^[15]

$$k_\lambda = -\left(\frac{\lambda}{4\pi d}\right) \ln \frac{\sqrt{(1-\rho_\lambda)^4 + 4\rho_\lambda T_{0,\lambda}} - (1-\rho_\lambda)}{2\rho_\lambda^2 T_{0,\lambda}}, \quad (8)$$

$$\rho_\lambda = \frac{(n_\lambda - 1)^2 + k_\lambda^2}{(n_\lambda + 1)^2 + k_\lambda^2}, \quad (9)$$

式中 ρ_λ 为透明衬底界面处的光谱反射率, $T_{0,\lambda}$ 为垂直入射时的透射率, d 为衬底的厚度, n_λ 为衬底表面的折射率。由此可知, k_λ 由 $T_{0,\lambda}$ 、 n_λ 、 d 决定, 因此分别采用椭偏仪和分光光度计测量了载玻片和石英玻璃表面的折射率以及垂直入射时的透射率, 采用游标卡尺测得 d 。具体做法是在 WAVSE32 软件中, 先拟合得到衬底的折射率 n_λ , 并将其固定, 之后导入透射率并输入衬底的厚度 d , 仅将 k_λ 作为拟合量, 最后通过逐点拟合透射率得到 k_λ 。

5 结果与讨论

采用的光谱型椭偏仪能同时测量 714 个波长点下的椭偏参数。假设同时选择 M ($M < 714$) 个波长点下的椭偏参数进行拟合, 则可得到 $2M$ 个椭偏方程, 未知参数有 M 个波长下的 n_i 和 k_i 以及薄膜厚度 d_i , 共 $2M+1$ 个, 大于方程个数。如果薄膜在测量范围内含有透明波段, 则可使用 Cauchy 或 Sellmeier 模型利用该波段的数据拟合得到薄膜厚度, 继而推得整个波段的光学常数。对于在测量范围内均无透明波段的吸收薄膜, 由于 d_i 、 n_i 和 k_i 之间强烈的相关性, 仅通过椭偏参数难以准确得到薄膜的光学常数。如果加入透射率 T 进行同时拟合, 则方程数为 $3M$ 个, 可大大降低计算的难度。

5.1 同时拟合椭偏参数和透射率 (SE+T)

拟合时采用如图 3 所示的物理模型, 其中粗糙层的光学常数采用 BEMA 理论处理。将分光光度计测量的透射率 T 导入, 和 ψ 、 Δ 一起作为拟合参数, 拟合时先不添加粗糙层, 直接将 d_i 、 n_i 、 k_i 作为拟合量, 待得到最小的 MSE 值后, 再添加表面粗糙层。SE+T 方法的具体操作步骤在文献[24]中已有详细描述。

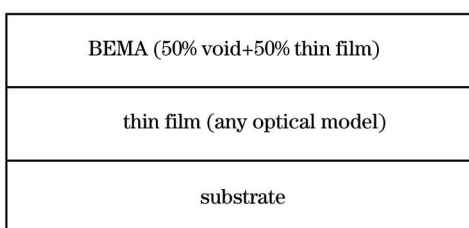


图 3 SE+T 法拟合采用的物理模型

Fig.3 Physical model for SE+T analysis

DLC 薄膜最终得到的拟合结果为 $d_i=11.48$ nm, $f_{\text{MSE}}=1.201$, 粗糙层厚度 $d_s=0$ 。a-Si 薄膜的拟合结果为 $d_i=79.29$ nm, $d_s=3.61$ nm, $f_{\text{MSE}}=1.762$ 。图 4 给出了以上结果的拟合情况, 可以看出模型计算的值与测量值较为接近。

图 5 给出了 SE + T 法得到的 DLC[图 5(a)]、a-Si[图 5(b)]薄膜的光学常数色散曲线。从图中可以看出拟合得到的 DLC 薄膜的折射率在红外光谱区域离散性较大, 这主要是由于椭偏仪的光源在红外光谱区强度较弱, 测量噪声比较大。a-Si 薄膜的折射率曲线在 440 nm 波长点附近出现了较大的波动, 但在其椭偏参数及透射率的测量值及拟合值中却无异常。说明受噪声影响, 不同的光学常数与厚度组合时, 在一定耦合条件下都能得到较小的 MSE 值。而对于折射率的测定, 至少要精确到 0.01 才是有意义的。SE + T 法的优点是能准确、快速得到可靠的厚度值^[24]。但随机噪声、样品表面的轻微污染或衬底上任何小的吸收也会影响光学常数的准确性, 而且 SE+T 法不遵循 K-K 关系, 得到的光学常数可能不合理。

5.2 光学常数参数化法和 SE+T 法联合拟合

当光学常数参数化法和其他拟合方法联合使用时, 既可提高拟合的灵敏度, 也可使得到的光学常数平滑、连续, 且具有合理的色散关系。因此, 将光学常数参数化法和 SE+T 法联合使用, 精确表征 DLC、a-Si 薄膜的光学常数, 物理模型如图 6 所示。

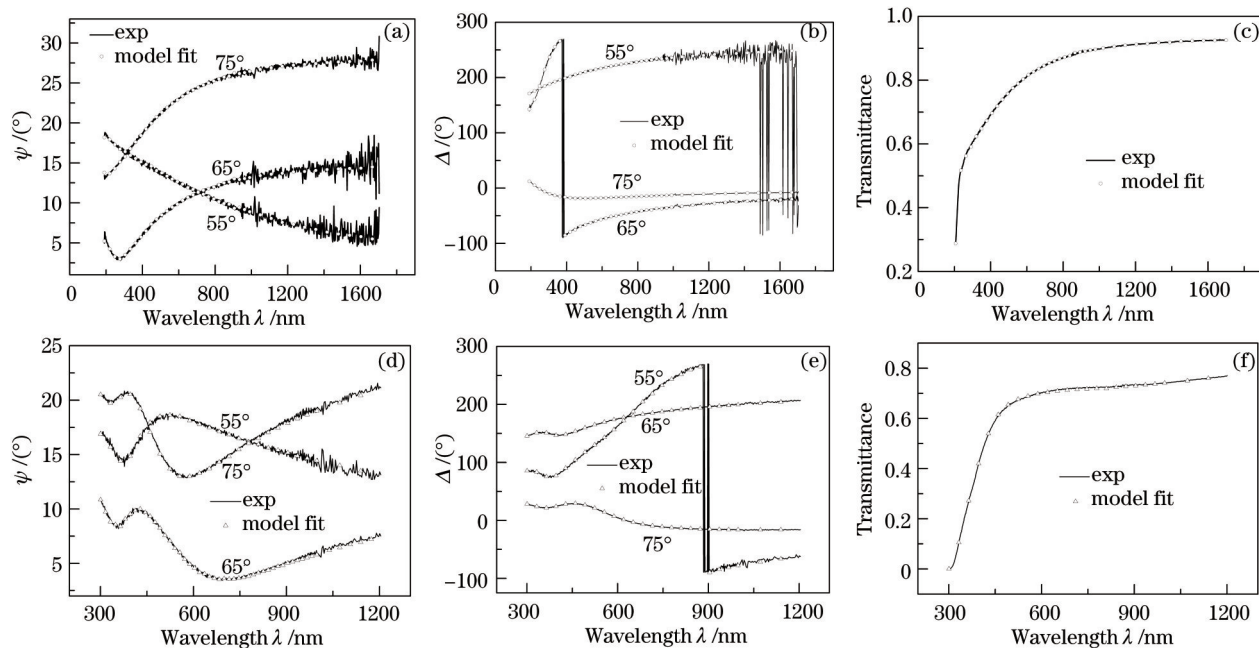


图4 ψ 、 Δ 以及透射率的拟合情况。(a)~(c) DLC薄膜；(d)~(f) a-Si薄膜
Fig.4 Model fit of ψ 、 Δ and transmittance to measured data. (a)~(c) DLC film; (d)~(f) a-Si film

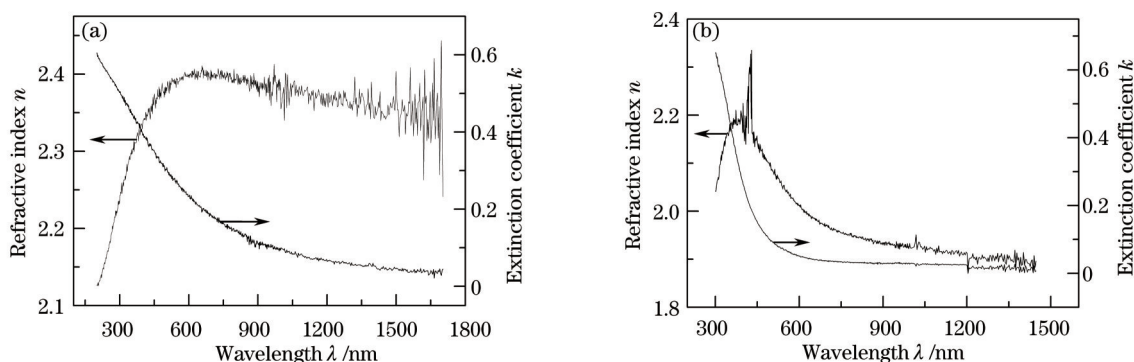


图5 SE+T法拟合得到的薄膜光学常数。(a) DLC薄膜；(b) a-Si薄膜
Fig.5 Optical constants of the film fitted by SE+T method. (a) DLC film; (b) a-Si film

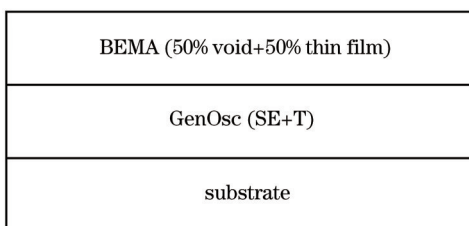


图6 SE+T法和光学常数参数化法联合拟合采用的物理模型

Fig.6 Physical model for a combined SE+T and optical constant parameterization approach

具体拟合过程如下：在SE+T法的基础上，保持衬底层和粗糙层不变，将薄膜层现有的光学模型替换为GenOsc函数^[25]。将SE+T方法获得的 ϵ_2 作为参考，使用TL振子模型计算出趋近于 ϵ_2 的 ϵ_{2TL} ，根据K-K关系计算出 ϵ_{1TL} ，这时初步实现被拟合薄膜(DLC或a-Si薄膜)光学常数的参数化，将被拟合薄膜的 d_r 、 n_r 、 k_r 同时作为拟合量，通过反演拟合 T 、 ψ 、 Δ 修正TL模型的参数，最终使TL模型计算出的 T 、 ψ 、 Δ 值趋近于实验测量的 T 、 ψ 、 Δ 值。DLC薄膜的最终拟合结果为 $d_r=11.52$ nm, $d_s=0$, $f_{MSE}=1.118$ 。a-Si薄膜的拟合结果为 $d_r=79.02$ nm, $d_s=3.84$ nm, $f_{MSE}=1.879$ 。联合拟合得到的薄膜厚度值与单独使用SE+T法得到的厚度值非常接近，间接说明联合拟合的方法也能可靠地得到吸收薄膜的厚度值。图7中实线为SE+T法和光学常数参数化法联合拟合

得到的 DLC[图 7(a)]、a-Si[图 7(b)]薄膜的光学常数,可以看出联合拟合得到的光学常数色散曲线消除了噪声的影响,变得平滑、连续,而且在 K-K 关系的约束下,拟合得到的吸收薄膜的光学常数变得更加合理。

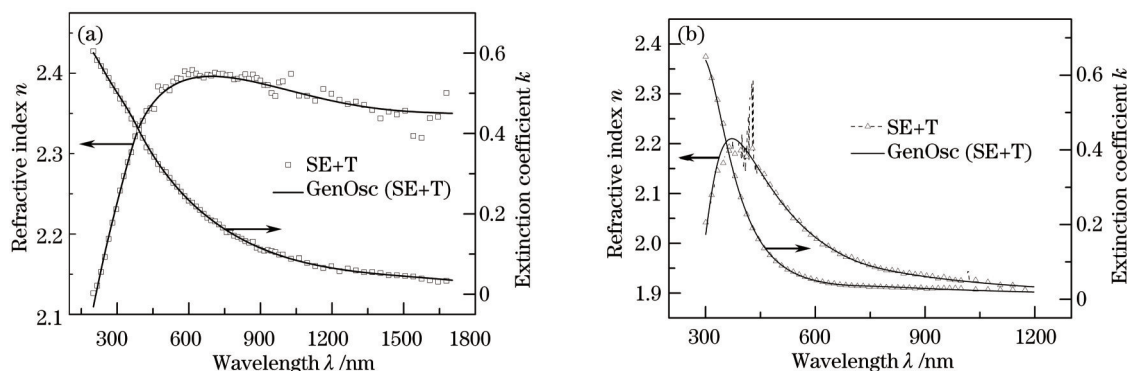


图 7 SE+T法和光学常数参数化法联合拟合得到的薄膜光学常数。(a) DLC 薄膜;(b) a-Si 薄膜

Fig.7 Optical constants of film fitted by a combined SE+T and optical constant parameterization approach. (a) DLC film; (b) a-Si film

采用了 Hilfiker^[2]等的“唯一性区间”的概念来评价联合拟合和单独使用 SE+T 法拟合结果的可靠程度。以 DLC 薄膜为例,唯一性测试的厚度范围为 7~16 nm,在这个厚度区间固定薄膜的厚度 d_t 为不同的值,而仅将光学常数(n_t, k_t)作为拟合量来寻找每个厚度下的最优 MSE(σ_0),为便于视觉上进行对比,采用归一化 σ_0^n (等于 σ_0 除以最小 σ_0 的值),图 8 为 SE+T 法和光学常数参数化法联合拟合以及单独使用 SE+T 法拟合得到的 DLC 薄膜 σ_0^n 随厚度 d_t 的变化关系。唯一性区间是指 σ_0^n 值小于 1.1 的厚度区间,本文中联合拟合的唯一性区间约为 3.3 nm,优于单独使用 SE+T 法的 3.6 nm。唯一性区间越小,说明得到的结果越可靠,因此采用联合拟合得到的光学常数更为可靠。

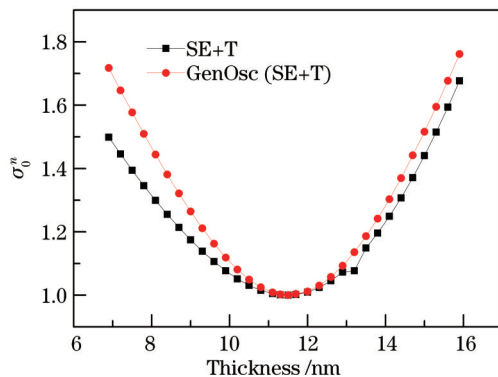


图 8 SE+T法和光学常数参数化法联合拟合以及单独使用SE+T法拟合得到的DLC薄膜 σ_0^n 随厚度的变化关系

Fig.8 σ_0^n of the DLC film as a function of test thickness fitted by SE+T method and a combined SE+T and optical constant parameterization approach

6 结 论

建立了一种光学常数参数化法和 SE+T 法联合使用精确表征非晶吸收薄膜光学常数的方法。对于在测量范围内存在透明波段的薄膜,可以根据该波段的数据确定薄膜厚度继而推得整个测量范围内的光学常数,否则仅采用椭偏参数难以精确表征其光学常数。如果加入透射率 T 和椭偏仪参数(ψ, Δ)同时作为拟合参数,通过直接拟合可简单、快速地得到吸收薄膜的厚度和光学常数,但测量数据中的噪声也会在光学常数中表现出来,且由于不遵循 K-K 关系,得到的光学常数可能不合理。以 DLC、a-Si 薄膜为例,采用光学常数参数化法和 SE+T 法联合拟合的方法分别测定了 DLC、a-Si 薄膜在 200~1700 nm、300~1200 nm 波段的光学常数,相比单独使用 SE+T 法,联合拟合得到的光学常数曲线变得更加平滑、合理,而且具有更好的唯一性。此法特别适合于精确测定厚度仅为几十纳米的非晶吸收薄膜的光学常数。也可根据薄膜的结构、成分选择不同的振子模型(Lorentz、Drude、Gaussian、Harmonic 等)和 SE+T 法联合使用,精确表征其他吸收薄膜的光学常数。

- 1 H Fujiwara. Spectroscopic Ellipsometry: Principles and Applications [M]. Chichester: John Wiley & Sons, 2007: 3–157.
- 2 J N Hilfiker, N Singh, T Tiwald, *et al.*. Survey of methods to characterize thin absorbing films with spectroscopic ellipsometry [J]. *Thin Solid Films*, 2008, 516(22): 7979–7989.
- 3 C Herzinger, P G Snyder, F Celi, *et al.*. Studies of thin strained InAs, AlAs, and AlSb layers by spectroscopic ellipsometry [J]. *J Appl Phys*, 1996, 79(5): 2663–2674.
- 4 K Järrendahl, H Arwin. Multiple sample analysis of spectroscopic ellipsometry data of semi-transparent films [J]. *Thin Solid Films*, 1998, 313: 114–118.
- 5 H Arwin, D E Aspnes. Unambiguous determination of thickness and dielectric function of thin films by spectroscopic ellipsometry [J]. *Thin Solid Films*, 1984, 113(2): 101–113.
- 6 W A McGahan, B Johs, J A Woollam. Techniques for ellipsometric measurement of the thickness and optical constants of thin absorbing films [J]. *Thin Solid Films*, 1993, 234(1): 443–446.
- 7 G E Jellison Jr, V I Merkulov, A A Puretzky, *et al.*. Characterization of thin-film amorphous semiconductors using spectroscopic ellipsometry [J]. *Thin Solid Films*, 2000, 377: 68–73.
- 8 G E Jellison Jr, F A Modine. Parameterization of the optical functions of amorphous materials in the interband region [J]. *Appl Phys Lett*, 1996, 69(3): 371–373.
- 9 D Franta, I Ohlídal, V Buršíková, *et al.*. Optical properties of diamond-like carbon films containing SiO₂ studied by the combined method of spectroscopic ellipsometry and spectroscopic reflectometry [J]. *Thin Solid Films*, 2004, 455: 393–398.
- 10 H G Tompkins, S Tasic. Synergism of transmission measurements with spectroscopic ellipsometry measurements in the analysis of a nearly opaque bimetal film stack on glass [J]. *J Vac Sci Technol A*, 2000, 18(3): 946–950.
- 11 R Swanepoel. Determination of the thickness and optical constants of amorphous silicon [J]. *J Phys E Sci Instrum*, 1983, 16(12): 1214–1222.
- 12 R Swanepoel. Determination of surface roughness and optical constants of inhomogeneous amorphous silicon films [J]. *J Phys E Sci Instrum*, 1984, 17(10): 896.
- 13 H Tompkins, E A Irene. Handbook of Ellipsometry [M]. Norwich: William Andrew, 2005.
- 14 J Tauc, R Grigorovici, A Vancu. Optical properties and electronic structure of amorphous germanium [J]. *Phys Status Solidi B*, 1966, 15(2): 627–637.
- 15 R Kitamura, L Pilon, M Jonasz. Optical constants of silica glass from extreme ultraviolet to far infrared at near room temperature [J]. *Appl Opt*, 2007, 46(33): 8118–8133.
- 16 K Forcht, A Gombert, R Joerger, *et al.*. Incoherent superposition in ellipsometric measurements [J]. *Thin Solid Films*, 1997, 302(1): 43–50.
- 17 R Joerger, K Forcht, A Gombert, *et al.*. Influence of incoherent superposition of light on ellipsometric coefficients [J]. *Appl Opt*, 1997, 36(1): 319–327.
- 18 L Lévesque. Refractive index determination of materials on thin transparent substrates using ellipsometry [J]. *Phys Educ*, 2000, 35(5): 359–342.
- 19 D J Hayton, T E Jenkins. On the frustration of back-surface reflection from transparent substrates in ellipsometry [J]. *Meas Sci Technol*, 2004, 15(2): N17–N20.
- 20 R A Synowicki. Suppression of backside reflections from transparent substrates [J]. *Phys Status Solidi C*, 2008, 5(5): 1085–1088.
- 21 H Fujiwara, J Koh, P I Rovira, *et al.*. Assessment of effective-medium theories in the analysis of nucleation and microscopic surface roughness evolution for semiconductor thin films [J]. *Phys Rev B*, 2000, 61(16): 10832–10844.
- 22 D A G Bruggeman. Calculation of various physics constants in heterogenous substances. I. Dielectricity constants and conductivity of mixed bodies from isotropic substances [J]. *Ann Phys*, 1935, 24(7): 636–664.
- 23 P J McMarr, J R Blanco. Measurement of the thickness of the surface layer on amorphous Ge films using spectroscopic ellipsometry: Validity of effective medium modeling [J]. *Appl Opt*, 1988, 27(20): 4265–4273.
- 24 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.
- 25 J M Zhao, P Yang. A method for determining ultrathin DLC film thickness by spectroscopic ellipsometry [J]. *Microsyst Technol*, 2012, 18: 1455–1461.