

红外光谱椭偏仪测量硫系玻璃 As_2Se_3 折射率的准确性

李阳^{1,2}, 刘永兴^{1,2}, 戴世勋^{1,2}, 徐铁峰^{1,2}, 林常规^{1,2}, 陈飞飞^{1,2}

¹ 宁波大学高等技术研究院红外材料及器件实验室, 浙江 宁波 315211;

² 浙江省光电探测材料及器件重点实验室, 浙江 宁波 310027

摘要 采用自制的 As_2Se_3 玻璃棒, 制备了具有不同厚度、背面粗糙度和表面光洁度的样品, 借助红外光谱椭偏仪测试了样品折射率, 通过光学模型拟合得到了其折射率参数。对比分析了厚度、背面粗糙度和表面光洁度对样品折射率的影响。结果表明: 样品厚度、背面粗糙度和表面光洁度都会明显影响椭偏仪的测量精度, 其中表面光洁度是关键因素。样品厚度应控制在 1~3 mm, 同时增大样品背面粗糙度和样品表面光洁度, 可显著提高椭偏仪的测试精度。

关键词 测量; 折射率; 准确性; 红外椭偏仪; As_2Se_3 硫系玻璃

中图分类号 O439

文献标识码 A

doi: 10.3788/AOS201838.0612002

Accuracy in Refractive Index Measurement of As_2Se_3 Chalcogenide Glass by IR Spectroscopic Ellipsometer

Li Yang^{1,2}, Liu Yongxing^{1,2}, Dai Shixun^{1,2}, Xu Tiefeng^{1,2},

Lin Changgui^{1,2}, Chen Feifei^{1,2}

¹ *Laboratory of Infrared Materials and Devices, Research Institute of Advanced Technologies, Ningbo University, Ningbo, Zhejiang 315211, China;*

² *Key Laboratory of Photoelectric Materials and Devices of Zhejiang Province, Ningbo, Zhejiang 310027, China*

Abstract The As_2Se_3 specimens with different thicknesses, roughnesses and surface smoothnesses are prepared by use of homemade As_2Se_3 glass rods. The refractive indices are measured by the infrared spectroscopic ellipsometer, and an optical model is built to obtain the refractive indices by fitting. The influences of thickness, roughness and surface smoothness on the refractive indices of specimens are comparatively analyzed. The results show that all factors have obvious influences on the measurement accuracy of the ellipsometer and the surface smoothness is of most importance. If the specimen thickness is controlled to be 1-3 mm, and simultaneously the back side roughness and surface smoothness of specimens are increased, the measurement accuracy of the ellipsometer can be obviously enhanced.

Key words measurement; refractive index; accuracy; infrared ellipsometer; As_2Se_3 chalcogenide glasses

OCIS codes 120.2130; 120.4640; 120.5710; 120.6660

1 引 言

折射率是最基本的光学材料性能参数之一,也是重要的光学设计参数之一。近些年来,随着红外热成像^[1]、红外传感^[2]、红外制导^[3]等技术的发展,红外光学材料在军事和民用领域获得了广泛的应

用。硫系玻璃作为一类性能优良的红外光学材料,具有红外透过性能良好、组分可调、热化学稳定等诸多优点^[4],在红外光学领域具有广阔的应用前景。

在红外材料的折射率测量方面,目前已经发展了多种测量方法,其中常用的方法包括最小偏向角法^[5]、全反射法^[6]、垂直底边入射法^[7]、V 棱镜法^[8]

收稿日期: 2017-10-20; 收到修改稿日期: 2018-01-16

基金项目: 国家重点研发计划(2016YFB0303800)、国家自然科学基金(61675105)、宁波大学王宽诚幸福基金

作者简介: 李阳(1992—),男,硕士研究生,主要从事椭偏仪测量方面的研究。E-mail: lxy0229@icloud.com

导师简介: 徐铁峰(1961—),男,博士,教授,博士生导师,主要从事光纤通信、光功能玻璃材料及器件等方面的研究。

E-mail: xutiefeng@nbu.edu.cn(通信联系人)

以及椭偏法^[9-10]。近年来,基于椭偏原理的椭偏仪已经成为测量薄膜样品厚度、光学常数等性能参数最有效的手段之一,它具有易于操作,测试对象范围广,对被测物样品尺寸要求不苛刻等诸多优点。然而,椭偏仪测量折射率的准确性受诸多因素的影响。潘永强等^[11]利用椭偏仪测量了 TiO₂ 薄膜样品经离子束处理前后的折射率,研究了不同表面粗糙度对薄膜样品在可见至近红外波段的折射率变化规律的影响。刘文德等^[12]研究了表面粗糙度对光学常数及模型拟合的影响,结果表明,表面粗糙度的改善可以有效提高拟合度。但研究对象通常为薄膜样品,而关于玻璃样品厚度、加工精度等对测试结果的影响研究鲜有报道。

本文以美国 J.A.Woollam 公司 IR-VASE Mark II 型红外光谱椭偏仪作为测试平台,测量了自制的 As₂Se₃ 玻璃的折射率,并根据所测样品的物理特性建立了光学模型,通过模型拟合得出折射率,并与标准数据进行了对比分析。深入研究了样品的厚度、背面粗糙度以及表面光洁度对折射率测量精度的影响,为利用椭偏仪准确测量硫系玻璃折射率提供了参考。

2 基本理论

2.1 测量原理

当偏振光入射到样品表面时,由于样品对平行于入射面的电场分量(p光)和垂直于入射面的电场分量(s光)具有不同的反射系数、透射系数和相位变化,因此样品表面反射光的偏振状态会发生变化,而这些变化中携带了一些关于样品性质的信息。通常,将这种变化用电场矢量在入射平面的复振幅反射系数 r_p 和垂直于入射平面的复振幅反射系数 r_s 之比 ρ 来表示:

$$\rho = \frac{r_p}{r_s} = \frac{|r_p|}{|r_s|} \exp[i(\psi_p - \psi_s)] = \tan \psi \cdot \exp(i\Delta), \quad (1)$$

式中 r_p 和 r_s 分别表示 p 光与 s 光的复振幅反射系数, $\tan \psi$ 表示反射光 p 分量与 s 分量的振幅系数比, Δ 表示 p 光与 s 光在反射前后的相位延迟差。

$$\tan \psi = \frac{|r_p|}{|r_s|}, \quad (2)$$

$$\Delta = \psi_p - \psi_s, \quad (3)$$

式中 ψ 和 Δ 为椭偏参数。(2)式和(3)式简称为椭偏方程^[13]。利用椭偏方程建立了入射光与反射光偏振态的联系,然后依据样品的物理特性建立光学模

型,不断调整待测材料的光学常数,使得实验椭偏参数与模型椭偏参数之间的偏差达到最小,最终拟合得到样品的光学参数。

2.2 模型拟合

在进行椭偏分析的过程中,模型的建立依赖两个方面,一方面要建立符合实际样品的物理结构模型,另一方面要选择适合描述材料光学常数的色散关系模型。

2.2.1 物理结构模型

建立结构模型的目的主要是研究被测样品包含哪些结构,引入哪些未知参量。通常情况下,建立的物理结构模型与被测样品的实际结构越接近,拟合得到的光学常数参量就会越精确。建立的物理模型如图 1 所示,考虑到所测样品表面并非光滑的理想平面,拟合时采用表面粗糙层(Srough^[14])与通用层(GenOsc^[15])两层结构模型。

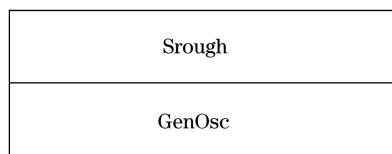


图 1 物理模型示意图

Fig. 1 Schematic of physical model

2.2.2 色散模型

色散现象^[16]可以解释为介质中带电粒子在光波电场作用下作受迫振动时产生的一种效应,即色散现象是光波电磁场与介质作用的结果,对应于椭偏分析中即为波长与光学常数之间的函数关系。对于这种函数关系,不同材料相应的制约关系不同,仪器自带的分析软件 WVASE32 提供了适用于不同材料的色散模型。选用适合描述透明波段光学常数的 Sellmeier 模型来拟合椭偏数据,其色散公式^[17]为

$$n^2 = 1 + \frac{A\lambda^2}{\lambda^2 - \lambda_0^2}, \quad (4)$$

式中 n 表示折射率, λ 表示入射光波长, A 表示与吸收能带有关的常数, λ_0 表示介质的吸收波长。

3 实 验

3.1 样品制备

玻璃样品采用实验室自制的 As₂Se₃ 玻璃棒,玻璃棒尺寸为 $\varnothing 50 \text{ mm} \times 60 \text{ mm}$, 其中 \varnothing 为直径。将玻璃棒进行切片加工,样品厚度分别加工为 1, 2, 3, 4, 5 mm。切片完成后,用抛光机分别对样品进行抛光和背面磨砂处理,分别采用 1000 # (粒径

为13 μm),2000#(粒径为6.5 μm),4000#(粒径为3.4 μm)的砂纸研磨样品背面,抛光机转速为80 r·min⁻¹,研磨5 min,可获得具有不同背面粗糙度的样品。抛光过程使用绒毛抛光布并辅以抛光液,抛光机转速为50 r·min⁻¹,分别抛光10,20,30,40,60 min,获得了具有不同表面光洁度的样品。

此外,为了进行对比测试分析,从同一玻璃棒中切出一块样品加工成棱镜,尺寸为30 mm×30 mm×10 mm,顶角角度为20°,加工精度为1',对三棱镜顶角所对应的两面进行抛光处理。棱镜样品折射率测量在西安应用光学研究所的国防科工委光学计量一级站进行。

3.2 性能测量

采用红外椭偏仪(IR-VASE Mark II型,J.A.Woollam公司,美国)测量样品折射率,测量波长范围为1.7~33 μm,分辨率为1~64 cm⁻¹,变角范围

为26°~90°。采用景深显微镜(VHX-1000型,基恩士公司,日本)获取样品的表面三维形态结构,单次采样测量区域为68.83 μm×50 μm,倍率为5000,测量高度间距为20 μm,拍摄速率为0.5 μm·s⁻¹,每次拍摄次数为10,测量温度为18℃,相对湿度为23%。

西安应用光学研究所的红外材料折射率测量仪的测量波段范围为2~12 μm,测量温度为22℃,相对湿度为49%,测试精度为±0.0002。

4 结果及分析

4.1 棱镜样品的折射率

西安应用光学研究所测量的As₂Se₃棱镜样品的折射率数据如表1所示。测得样品的椭偏参数后,通过建立模型拟合获得折射率参数,选取2~12 μm波段得到的结果与国防科工委光学计量一级站的测量结果进行对比。

表1 As₂Se₃棱镜玻璃样品的折射率数据

Table 1 Refractive indices of As₂Se₃ prism glass specimens

Wavelength / μm	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12
Refractive index	2.8219	2.8039	2.7964	2.7926	2.7898	2.7873	2.7850	2.7823	2.7795	2.7766	2.7737

4.2 厚度对折射率的影响

为探究厚度对椭偏测试的影响,样品保持相同的背面粗糙度(2000#)和抛光时长(30 min),对1~5 mm五种不同厚度的玻璃样品折射率进行拟合,结果如图2所示,其误差如图中右上角小插图。从中可看出,当玻璃样品的厚度为1,2,3 mm时,折射率测试曲线基本重合,而且与棱镜样品的折射率相近,在红外成像工作波段8~12 μm范围内的误差为0~0.005。而对于厚度为4 mm和5 mm的样品,其折射率误差为0.007~0.009。根据以上测量结果,可以得出结论:当样品厚度为1~3 mm时,折射率的测量精度较高。

4.3 背面粗糙度对折射率的影响

在椭偏仪测量折射率的过程中,样品背面的反射光(以下称为背反)会叠加进入到探测器中^[18],背反的相位信息会丢失,进而极大地增加拟合难度。为了探究背反所带来的影响,在厚度(2 mm)和抛光时长(30 min)相同的情况下,制备了具有不同背面粗糙度的样品,分别记为S1,S2,S3,具体参数如表2所示,可以看出,样品背面最大轮廓高度R_z随着砂纸目数的增大而增大。图3所示为样品的表面结构图。

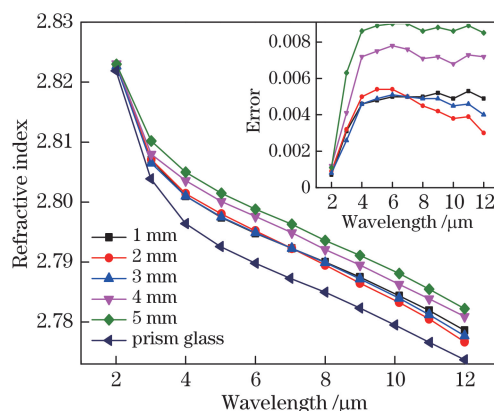


图2 不同厚度样品的折射率及误差值

Fig. 2 Refractive indices and errors of specimens with different thicknesses

表2 不同背面粗糙度样品参数

Table 2 Parameters of specimens with different back side roughnesses

Sample No.	R _z / μm	Thickness / mm	Diameter / mm
S1	2.49	2	50
S2	0.95	2	50
S3	0.66	2	50

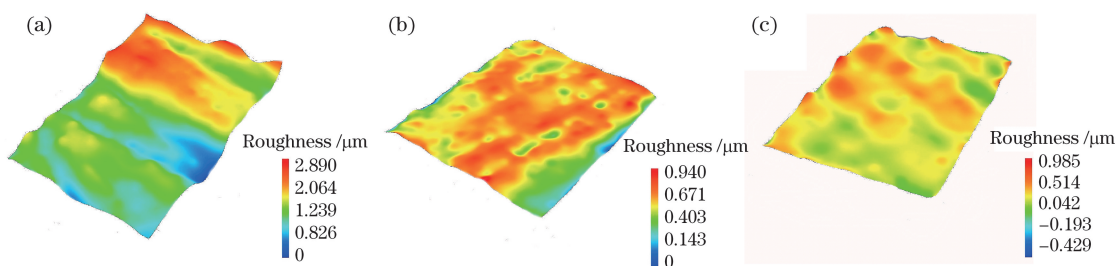


图 3 不同背面粗糙度样品的表面结构图。(a) S1; (b) S2; (c) S3

Fig. 3 Surface structural diagrams of specimens with different back side roughnesses. (a) S1; (b) S2; (c) S3

图 4 所示为不同背面粗糙度样品折射率的拟合结果,测量误差如图中右上角小图所示。从图中可以看出,当砂纸为 1000 # 时,测试误差范围为 (0.006,0.010);当砂纸为 2000 # 时,测试误差范围为 (0.010,0.018);而当砂纸为 4000 # 时,测试误差值明显增大,为 (0.023,0.026)。由此可见,背反因素会极大影响椭圆参数的测量精度。为消除背反的影响,应增大样品背面粗糙度,当 $R_z > 2.49 \mu\text{m}$ 可获得较为精确的数据。

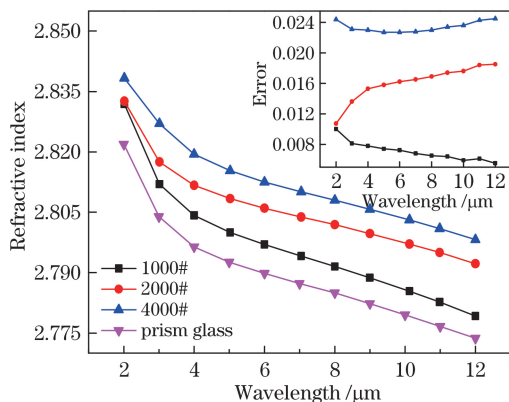


图 4 不同背面粗糙度样品的折射率及误差值

Fig. 4 Refractive indices and errors of specimens with different back side roughnesses

4.4 表面光洁度对折射率的影响

在实际样品制备过程中,受人为因素影响,抛光后样品的表面光洁度存在误差。根据椭圆仪的测试原理可知,椭圆光经样品表面反射后被接收,反射光信息极易受到样品表面光洁度的影响。为探究不同表面光洁度对测试结果的影响,在相同厚度(2 mm)和相同目数砂纸打磨背面(1000 #)的情况下,通过设置不同抛光时长获得了具有不同表面光洁度的样品。同样测试了样品的表面形态结构,获得平均轮廓最大高度(R_z)随抛光时长的变化曲线图,如图 5 所示。从图中可以看出,当抛光时长小于 30 min 时,样品平均轮廓最大高度 R_z 随抛光时长的增加而显著减小;但持续抛光 30 min 后, R_z 数值几乎保持

不变,维持在 $0.02 \mu\text{m}$ 左右,这表明过长的抛光时长已经无法进一步改善样品的表面粗糙度。

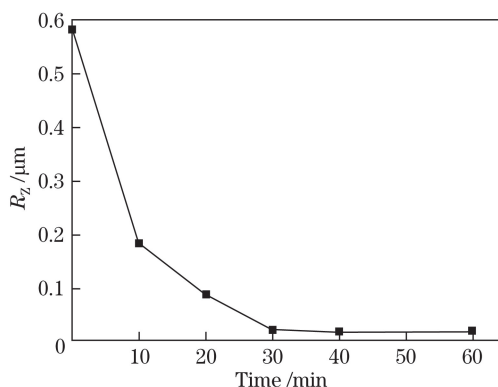


图 5 样品表面粗糙度随抛光时长的变化曲线

Fig. 5 Surface roughness of specimens versus polishing time

图 6 所示为不同表面光洁度样品的折射率拟合结果,测量误差如图中右上角小图所示。从图中可以看出,当抛光时长为 10 min 时,测试误差为 (0.020,0.027);当抛光时长增大到 20 min 时,测试误差减小为 (0.015,0.018)。而当抛光时长为 30 min 时,测试误差减小为 (0.002,0.003),尤其是在 4~12 μm 波段范围内,测量值误差为 ± 0.001 。因此,适

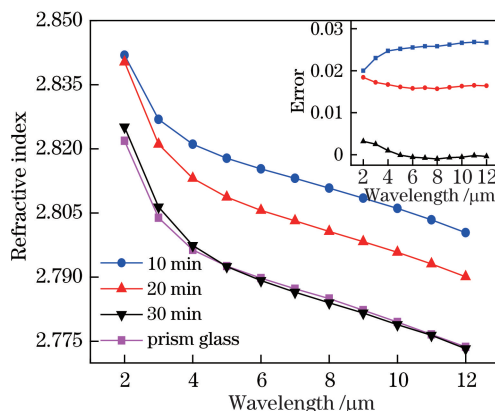


图 6 不同表面光洁度样品的折射率及误差值

Fig. 6 Refractive indices and errors of specimens with different surface smoothnesses

当增加抛光时长可改善样品的表面光洁度,显著提高椭圆偏测试的精确度,当 $R_z < 0.02 \mu\text{m}$ 时,可实现误差在 ± 0.001 范围内的高精度测量。

5 结 论

在 $2\sim 12 \mu\text{m}$ 波段范围内探究了厚度、背面粗糙度和表面光洁度三个因素对红外光谱椭圆偏测试精度的影响,建立光学模型拟合得到折射率参数,并进行对比分析。对于所研究的 As_2Se_3 玻璃,可得出以下结论:1)制备样品厚度以 $1\sim 3 \text{mm}$ 为宜;2)采用砂纸打磨样品背面可消除样品背面反射作用对椭圆偏测试的影响,当背面粗糙度 $R_z > 2.49 \mu\text{m}$ 时可获得较好的测量结果;3)表面光洁度是影响测量精度的关键因素之一,可适当增加抛光时长,当样品表面光洁度 $R_z < 0.02 \mu\text{m}$ 时可实现高精度测量。实际测量过程中需综合考虑这三个因素的影响,以提高样品的加工质量。该研究为实现椭圆偏仪高精度测量硫系玻璃等块状红外材料样品提供了参考。

参 考 文 献

- [1] Ma H, Calvez L, Bureau B, *et al.* Crystallization study of infrared transmitting glass ceramics based on $\text{GeS}_2\text{-Sb}_2\text{S}_3\text{-CsClGeS}_2\text{-Sb}_2\text{S}_3\text{-CsCl}$ math container loading mathjax[J]. Journal of Physics & Chemistry of Solids, 2007, 68(5/6): 968-971.
- [2] Moskal D, Martan J, Lang V, *et al.* The stamp method for processing of high noise data from infrared sensor in harsh environment[J]. Sensors & Actuators A Physical, 2017, 263: 480-487.
- [3] Yue Y, Li L Y, Qi M. Application of multi-target tracking in infrared guidance system[J]. Electronic Measurement Technology, 2017, 40(3): 103-107.
岳元, 李丽亚, 祁蒙. 多目标跟踪在红外制导系统中的应用[J]. 电子测量技术, 2017, 40(3): 103-107.
- [4] Dai S X, Yu X Y, Zhang W, *et al.* Research progress of chalcogenide glass photonic crystal fibers[J]. Laser & Optoelectronics Progress, 2011, 48(9): 090602.
戴世勋, 淤杏燕, 张巍, 等. 硫系玻璃光子晶体光纤研究进展[J]. 激光与光电子学进展, 2011, 48(9): 090602.
- [5] Astrua M, Pisani M. Validation of a novel technique for the measurement of the refractive index of a prism by means of interlaboratory comparison[J]. Measurement, 2009, 42(10): 1546-1549.
- [6] Ji Y J, Du Y J, Guo H Y. Index of refraction of prism using the holoreflecting method[J]. Physical Experiment of College, 2010, 23(6): 23-24.
纪延俊, 杜玉杰, 郭红岩. 全反射法对棱镜折射率的测定[J]. 大学物理实验, 2010, 23(6): 23-24.
- [7] Mi B Y. Photoelectric automatic refractometer with high precision in the wavelength range 365 to 12000 nm[J]. Optics & Precision Engineering, 1998, 6(3): 79-84.
米宝永. 光谱范围从 365 至 12000 nm 的高精度光电自动折射仪[J]. 光学精密工程, 1998, 6(3): 79-84.
- [8] Ren Q, Chow Y T, Chan H P, *et al.* Refractive index dispersion measurement on nano-crystal and polymer composite $\text{Bi}_1\text{Ti}_3\text{O}_{12}/\text{PEK-C}$ films[J]. Journal of Materials Science Letters, 2002, 21(9): 677-678.
- [9] Yu Z X, Dang M. Generalized simulated annealing algorithm applied in the ellipsometric inversion problem[J]. Thin Solid Films, 2003, 425(1): 108-112.
- [10] Synowicki R A. Spectroscopic ellipsometry characterization of indium tin oxide film microstructure and optical constants[J]. Thin Solid Films, 1998, 313/314: 394-397.
- [11] Pan Y Q, Hang L X, Wu Z S, *et al.* Influence of ion beam post-treatment on surface roughness of TiO_2 thin films[J]. Chinese Journal of Lasers, 2010, 37(4): 1108-1113.
潘永强, 杭凌侠, 吴振森, 等. 离子束后处理对 TiO_2 薄膜表面粗糙度的影响[J]. 中国激光, 2010, 37(4): 1108-1113.
- [12] Liu W D, Chen C, Zhang H, *et al.* Effect of glass substrate and surface roughness on ellipsometric measurement of silicon nitride films[J]. Chinese Journal of Lasers, 2012, 39(6): 245-248.
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圆偏测量中的影响[J]. 中国激光, 2012, 39(6): 245-248.
- [13] Fujiwara H. Spectroscopic ellipsometry: Principles and applications[M]. New York: John Wiley & Sons, 2007.
- [14] Tikhonravov A V, Tikhonravov A A, Duparré A, *et al.* Effects of interface roughness on the spectral properties of thin films and multilayers[J]. Applied Optics, 2003, 42(25): 5140-5148.
- [15] Zhao J M, Yang P. A method for determining ultrathin DLC film thickness by spectroscopic ellipsometry[J]. Microsystem Technologies, 2012, 18(9/10): 1455-1461.
- [16] Wang Q, Shen H, Wang W, *et al.* Ellipsometry by simulated annealing algorithm[J]. Acta Photonica Sinica, 2008, 37(2): 63-65.
王青, 沈华, 王卫, 等. 光学薄膜的椭圆偏振模型分析与数据处理[J]. 光子学报, 2008, 37(2): 63-65.
- [17] Herzinger C M, Johs B, Mcgahan W A, *et al.*

Ellipsometric determination of optical constants for silicon and thermally grown silicon dioxide via a multi-sample, multi-wavelength, multi-angle investigation[J]. Journal of Applied Physics, 1998, 83(6): 3323-3336.

[18] Kitamura R, Pilon L, Jonasz M. Optical constants of silica glass from extreme ultraviolet to far infrared at near room temperature[J]. Applied Optics, 2007, 46(33): 8118-8133.