

DRC-MME 高级参数模型直通标定实验的自由度分析

苗政委^{1,2,3}, 汤媛媛^{1,2*}, 魏凯^{1,2}, 张雨东^{1,2}¹中国科学院自适应光学重点实验室, 四川 成都 610209;²中国科学院光电技术研究所, 四川 成都 610209;³中国科学院大学, 北京 100049

摘要 在椭偏测量中,采用直通式标定方法准确标定出系统模型参数对于样品的精确测量至关重要。由于双旋转补偿器式 Mueller 矩阵椭偏仪(DRC-MME)高级参数模型复杂,参数数量较多,且部分高级参数之间存在相互级联和耦合,为保证标定结果的准确性,实验中各个参数之间的独立性关系需要被检验。针对这一问题,使用奇异值分解、泡利矩阵和其他数学工具,从理论上对 DRC-MME 直通标定实验的自由度进行研究分析,明确在数据拟合过程中的“无用”参数,并通过仿真实验验证研究分析结果的正确性。最后搭建实验平台,开展了直通标定实验,得到了符合实际物理意义的高级参数标定结果,并使用标定好的高级参数模型对硅衬底上二氧化硅薄膜厚度进行了测量,测量结果与标称值相差 1.9 nm,重复测量精度为 5.31 pm。所提对直通标定实验自由度的研究分析方法不仅适用于椭偏仪,也可为其他的多参数优化过程提供一个分析思路。

关键词 测量; 椭偏测量; 自由度; 奇异值分解; 泡利矩阵; 参数标定

中图分类号 O436.3

文献标志码 A

doi: 10.3788/AOS202141.2012003

Degree of Freedom Analysis of Dual-Rotating Compensator Mueller Matrix Ellipsometer Through Calibration Experiments Based on Advanced Parameter Model

Miao Zhengwei^{1,2,3}, Tang Yuanyuan^{1,2*}, Wei Kai^{1,2}, Zhang Yudong^{1,2}¹Key Laboratory of Adaptive Optics, Chinese Academy of Sciences, Chengdu, Sichuan 610209, China;²Institute of Optics and Electronics, Chinese Academy of Sciences, Chengdu, Sichuan 610209, China;³University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China

Abstract The straight-through calibration approach is used in ellipsometry measurement to calibrate system model parameters for accurate sample measurement. The advanced parameter model of dual-rotating compensator Mueller matrix ellipsometer (DRC-MME) is complex, with several large parameters. Some advanced parameters are cascaded and coupled together. The independent relationship between parameters in the experiment must be studied to ensure the accuracy of the results of the calibration; thus, the degree of freedom of the DRC-MME through calibration experiments was theoretically analyzed in this study using singular value decomposition, Pauli matrix, and other tools. The “useless” parameters in data fitting methods are elucidated, and a simulation experiment supports the conclusion. Finally, the experimental platform is built, the straight-through calibration experiment is conducted, and the advanced parameter calibration results are obtained which are consistent with the actual physical significance. The thickness of the silicon dioxide film on the silicon substrate was measured using the calibrated advanced parameter model. The measurement result differs from the nominal value by 1.4 nm, and the repeated measurement accuracy is 10.2 pm. In this study, the proposed degree of freedom of the system analysis approach is applied to ellipsometer and provides an analysis idea for other multiparameter optimization processes.

收稿日期: 2021-04-06; 修回日期: 2021-04-29; 录用日期: 2021-05-06

基金项目: 中科院信息工程领域核心关键技术攻关项目

通信作者: *yytang001@126.com

Key words measurement; ellipsometry measurement; degree of freedom; singular value decomposition; Pauli matrix; parameter calibration

OCIS codes 120.3940; 120.2130; 150.1488; 150.1135

1 引言

近年来,随着固体物理、生物医学等学科发展迅猛,纳米光栅^[1]、压电陶瓷^[2]、各向异性薄膜^[3]等新型光电材料不断涌现,越来越丰富的材料信息需要被测量。椭圆偏振测量技术由于测量精度高、灵敏度高、可测量参数多、非接触的测量方式、测量时对环境要求较低等特性被广泛应用于物理、材料、化学、生物等领域微纳结构的几何形貌和物理参数的测量^[4-7],是一种重要的光学测量手段。其中双旋转补偿器式 Mueller 矩阵椭圆偏振仪(DRC-MME)由于宽光谱测量下的高稳定性、标定操作时的低复杂度、友好的数据处理方式、单次测量可得到全 Mueller 矩阵,成为了目前最常用的椭圆偏振仪配置^[8-9]之一,提高 DRC-MME 的测量精度一直是椭圆偏振仪的重要研究方向。

与传统测量技术不同,椭圆偏振测量是一种间接测量方法。DRC-MME 通过将测量得到的样品 Mueller 矩阵与对测量系统进行光学特性建模后得到的 Mueller 矩阵相比较,反演并提取出待测样品的特征参数^[10]。因此,实现高精度样品参数测量的关键在于精确的系统建模和系统参数标定。受限于材料的物理特性和现有的加工能力,补偿器、偏振片、聚焦透镜等椭圆偏振测量系统中的典型器件的理想模型^[11]很难准确描述光在系统中传输的真实作用,因此需要考虑各个元件的非理想因素,建立更加准确的光学模型。为此,已经有一些研究对 DRC-MME 的理想模型进行修正,建立了各个光学器件的高级参数模型,包括对偏振片漏光效应、应力双折射效应、旋光效应的模型修正^[12],补偿器等效旋光性、等效旋转角等效应的模型修正^[13],聚焦透镜旋光性和应力双折射效应的模型修正^[14],系统有限带宽导致的退偏效应的修正^[15]等。有了精确的系统模型,系统参数的标定则可以看作是样品参数测量的逆过程,即采用已知光学常数或 Mueller 矩阵的标准样品求解出系统参数。已知参数的光学薄膜^[16]、标准光学偏振器件(如偏振片^[14])都可以作为标准样品。其中,DRC-MME 的直通式测量相当于一种以空气为样品^[9],已知 Mueller 矩阵为单位矩阵的重要且有效的标定方法。

系统参数标定的目的是为了对每个参数准确赋

值,从而通过系统模型计算,得到样品参数的精确测量结果。虽然每个元件的高级参数都具有物理意义,但是研究发现,在 DRC-MME 高级参数模型中,部分高级参数之间存在相互级联和耦合,这些参数之间的相关性使得部分参数在拟合过程中并非独立,即会产生“无用”参数。这些“无用”参数参与测量的物理过程,对系统的数学建模有意义,但对参数拟合过程而言,会使模型过拟合,大幅延长拟合时间,产生多组拟合最优解,甚至出现不符合物理意义的最优拟合结果,导致错误的测量结果。基于此,在进行直通标定实验之前,需要研究高级参数之间的相关性,分析模型的自由度,从而确定合适的拟合参数,得到准确的参数拟合结果。针对这一问题,本文使用奇异值分解、泡利矩阵分解等方式,从理论上对 DRC-MME 直通标定实验中的自由度进行了研究分析,明确了在数据拟合过程中的“无用”参数,并通过仿真实验验证了研究分析结果的正确性。后续搭建实验平台,进行了直通标定实验,得到了符合物理意义的高级参数标定结果,并使用标定好的高级参数模型测量了硅衬底上二氧化硅薄膜的厚度,可以达到纳米级的测量精度。

2 DRC-MME 的测量原理及高级参数模型

DRC-MME 的基本结构如图 1 所示,包括宽谱光源、聚焦系统、偏振态发生(PSG)系统、样品、偏振态分析(PSA)系统、光谱仪。其中 PSA 和 PSG 系统均包含 1 个偏振片和 1 个旋转的补偿器。

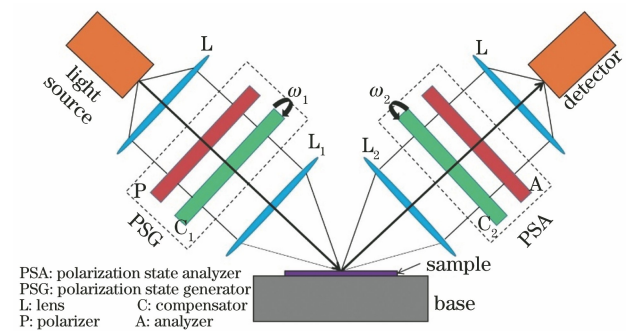


图 1 DRC-MME 光路图

Fig. 1 Optical path of DRC-MME

忽略光谱仪的线宽效应,测量的各个波段的光强数据之间可以被认为相互独立,每个波长下的光

强数据可以单独分析。根据图 1 所示的光路图,可以得到波长 λ_0 下光谱仪测量得到的光强数据 I 。由于 DRC-MME 系统的两个补偿器均在旋转,测量数据应该是一个与时间有关的函数,表达式为

$$I(t) = I_0 \mathbf{S}_{\text{out}} \mathbf{M}_R(-A) \mathbf{M}_A \mathbf{M}_R(A) \mathbf{M}_R(-\omega_2 t - C_2) \times \mathbf{M}_{C_2}(\delta_2) \mathbf{M}_R(\omega_2 t + C_2) \mathbf{M}_{L_2} \mathbf{M}_s \mathbf{M}_{L_1} \mathbf{M}_R(-\omega_1 t - C_1) \times \mathbf{M}_{C_1}(\delta_1) \mathbf{M}_R(\omega_1 t + C_1) \mathbf{M}_R(-P) \mathbf{M}_P \mathbf{M}_R(P) \mathbf{S}_{\text{in}}, \quad (1)$$

式中: $\mathbf{M}_R(x)$ 为旋转矩阵; P, A, C_1, C_2 分别是起偏器, 检偏器, 补偿器 1, 补偿器 2 的初始方位角; ω_1, ω_2 分别是两补偿器旋转的角速度; δ_1, δ_2 分别是两补偿器的相位延迟; $\mathbf{M}_P, \mathbf{M}_A, \mathbf{M}_{C_1}, \mathbf{M}_{C_2}, \mathbf{M}_s$ 分别是起偏器, 检偏器, 补偿器 1, 补偿器 2, 样品的 Mueller 矩阵; \mathbf{S}_{in} 是入射光的斯托克斯矢量; \mathbf{S}_{out} 是光谱仪的偏振敏感度矢量。

考虑各光学器件的旋光效应、漏光效应、应力双折射效应、偏振相关透过效应等各种非理想效应, 偏振片、复合波片、多胶合聚焦透镜的琼斯矩阵^[17]可以分别写为

$$\mathbf{J}_j = \begin{bmatrix} 1 & -i\alpha_j \\ -i\alpha_j & 1 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} 1 & -i\chi_j^* \\ -i\chi_j & \gamma_j \end{bmatrix} \times \begin{bmatrix} 1 & i\alpha_j \\ i\alpha_j & 1 \end{bmatrix}, \quad j = A, P, \quad (2)$$

$$\mathbf{J}_C = \mathbf{J}_R(\rho_C) \mathbf{J}_R(-\theta_C) \mathbf{J}_W(\delta_C, \epsilon_C) \mathbf{J}_R(\theta_C), \quad (3)$$

$$\mathbf{J}_L = \mathbf{J}_R(\rho_L) \mathbf{J}_R(-\theta_L) \mathbf{J}_W(\delta_L, \epsilon_L) \mathbf{J}_R(\theta_L), \quad (4)$$

$$\mathbf{J}_R(\alpha) = \begin{bmatrix} \cos \alpha & \sin \alpha \\ -\sin \alpha & \cos \alpha \end{bmatrix}, \quad \mathbf{J}_W(\delta, \epsilon) = \begin{bmatrix} 1 & 0 \\ 0 & \epsilon e^{-i\delta} \end{bmatrix}. \quad (5)$$

琼斯矩阵和 Mueller 矩阵之间的转换关系为

$$\mathbf{M} = \mathbf{A}(\mathbf{J} \otimes \mathbf{J}^*) \mathbf{A}^{-1} = \begin{bmatrix} 1 & 0 & 0 & 1 \\ 1 & 0 & 0 & -1 \\ 0 & 1 & 1 & 0 \\ 0 & i & -i & 0 \end{bmatrix} (\mathbf{J} \otimes \mathbf{J}^*) \begin{bmatrix} 1 & 0 & 0 & 1 \\ 1 & 0 & 0 & -1 \\ 0 & 1 & 1 & 0 \\ 0 & i & -i & 0 \end{bmatrix}^{-1}, \quad (6)$$

式中: \otimes 表示矩阵的克罗内克积; \mathbf{J}^* 是 \mathbf{J} 的共轭转置。

实验的光源不会产生完全的非偏振光^[15]; 光谱仪同样无法保证对所有方向偏振光的敏感度完全相同^[9]。在实际情况下, 光源和光谱仪的斯托克斯矢量为

$$\mathbf{S}_{\text{in}} = [1, P_1, P_2, P_3], \quad (7)$$

$$\mathbf{S}_{\text{out}} = [1, A_1, A_2, A_3]. \quad (8)$$

将(2)、(7)和(8)式代入(1)式中进行展开计算, 可以将结果记作

$$I(t) = I_0 \left\{ 1 + \sum_{n=1}^{12} [a_n \cos(N_n \omega t) + b_n \sin(N_n \omega t)] \right\}, \quad (9)$$

式中: a_n, b_n 为归一化的理论傅里叶系数。另一方面, 对光谱仪得到的光强数据进行傅里叶分析, 得到一组归一化的实验傅里叶系数 a'_n, b'_n :

$$I'(t) = I'_0 \left\{ 1 + \sum_{n=1}^{12} [a'_n \cos(N_n \omega t) + b'_n \sin(N_n \omega t)] \right\}. \quad (10)$$

如果建立的模型与实际的效应一致, 经过归一化后的(9)和(10)式两组傅里叶系数应该完全相等。椭圆测量中的参数拟合过程为

$$\underset{(n, k; d, \theta) \in \Theta}{\text{argmin}} \|\mathbf{M}_c(n, k; d, \theta) - \mathbf{M}_m\|, \quad (11)$$

式中: $\mathbf{M}_c, \mathbf{M}_m$ 分别表示理论傅里叶系数和实验傅里叶系数合并而成的矩阵。选择合适的优化方法对两组系数进行拟合, 使得拟合残差最小, 最优点的值 $(n_{\text{opt}}, k_{\text{opt}}; d_{\text{opt}}, \theta_{\text{opt}})$ 即为椭圆法的测量结果。

3 DRC-MME 高级参数模型直通标定实验自由度分析

由于(4)式所示的聚焦透镜高级参数模型无法体现高级参数之间的独立性关系, 为了正确分析系统高级参数之间的相关性, 在正式分析标定实验参数自由度之前, 需要一个先验知识, 即对聚焦透镜的高级参数模型进行改写。

3.1 聚焦透镜高级参数模型的改写

用于光学实验的聚焦透镜通常镀有增透膜, 偏振相关系数 ϵ 近似为 1^[15]。此时, 聚焦透镜的琼斯矩阵可以改写为泡利矩阵和单位矩阵组成的形式:

$$\mathbf{J}_L = \mathbf{J}_R(\rho_L) \mathbf{J}_R(-\theta_L) \mathbf{J}_W(\delta_L, 1) \mathbf{J}_R(\theta_L) = (\cos \rho_L \mathbf{I} + i \sin \rho_L \boldsymbol{\sigma}_y) (\cos \theta_L \mathbf{I} - i \sin \theta_L \boldsymbol{\sigma}_y) \times [\cos(\delta_L/2) \mathbf{I} + i \sin(\delta_L/2) \boldsymbol{\sigma}_z] (\cos \theta_L \mathbf{I} + i \sin \theta_L \boldsymbol{\sigma}_y) = \exp(i \rho_L \boldsymbol{\sigma}_y) \exp(-i \theta_L \boldsymbol{\sigma}_y) \exp(i \delta_L \boldsymbol{\sigma}_z / 2) \exp(i \theta_L \boldsymbol{\sigma}_y). \quad (12)$$

泡利矩阵的形式^[18]为

$$\boldsymbol{\sigma}_x = \begin{bmatrix} 0 & 1 \\ 1 & 0 \end{bmatrix}, \quad \boldsymbol{\sigma}_y = \begin{bmatrix} 0 & -i \\ i & 0 \end{bmatrix}, \quad \boldsymbol{\sigma}_z = \begin{bmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -1 \end{bmatrix}, \quad (13)$$

对(12)式继续处理,改写为三种泡利矩阵组成的形式:

$$\begin{aligned} \mathbf{J}_L &= \exp(i\rho_L \boldsymbol{\sigma}_y) \exp(-i\theta_L \boldsymbol{\sigma}_y) \times \\ &\exp(i\delta_L \boldsymbol{\sigma}_z/2) \exp(i\theta_L \boldsymbol{\sigma}_y) = \\ &\exp(i\beta_1 \boldsymbol{\sigma}_z) \exp(i\mu_1 \boldsymbol{\sigma}_x) \exp(i\alpha_1 \boldsymbol{\sigma}_y) = \\ &\exp(i\alpha_2 \boldsymbol{\sigma}_y) \exp(i\mu_2 \boldsymbol{\sigma}_x) \exp(i\beta_2 \boldsymbol{\sigma}_z), \end{aligned} \quad (14)$$

其中

$$\left\{ \begin{aligned} \alpha_1 &= \frac{1}{2} \arctan \frac{\tan^2 \gamma_L \sin(4\theta_L - 2\rho_L) + \sin 2\rho_L}{\tan^2 \gamma_L \cos(4\theta_L - 2\rho_L) + \cos 2\rho_L} \\ \mu_1 &= \arctan \frac{\tan \gamma_L \sin(2\theta_L - \rho_L - \alpha_1)}{\cos(\rho_L - \alpha_1)} \\ \beta_1 &= \arctan \frac{\tan \gamma_L \cos(2\theta_L - \rho_L - \alpha_1)}{\cos(\rho_L - \alpha_1)} \\ \gamma_L &= \delta_L/2 \end{aligned} \right. , \quad (15)$$

$$\left\{ \begin{aligned} \alpha_2 &= \frac{1}{2} \arctan \frac{\tan^2 \gamma_L \sin(4\theta_L - 2\rho_L) - \sin 2\rho_L}{-\tan^2 \gamma_L \cos(4\theta_L - 2\rho_L) - \cos 2\rho_L} \\ \mu_2 &= \arctan \frac{\tan \gamma_L \sin(2\theta_L - \rho_L + \alpha_2)}{\cos(\rho_L - \alpha_2)} \\ \beta_2 &= \arctan \frac{\tan \gamma_L \cos(2\theta_L - \rho_L + \alpha_2)}{\cos(\rho_L - \alpha_2)} \\ \gamma_L &= \delta_L/2 \end{aligned} \right. . \quad (16)$$

对于泡利矩阵,有

$$\begin{cases} \mathbf{J}_R(\alpha) = \exp(i\alpha \boldsymbol{\sigma}_y) \\ \mathbf{J}_W(\delta, 1) = \exp(i\delta \boldsymbol{\sigma}_z/2), \end{cases} \quad (17)$$

$$\begin{aligned} \exp(i\rho \boldsymbol{\sigma}_x) &= \exp[i(-\pi/4) \boldsymbol{\sigma}_y] \times \\ &\exp(i\rho \boldsymbol{\sigma}_z) \exp[i(\pi/4) \boldsymbol{\sigma}_y]. \end{aligned} \quad (18)$$

此时,聚焦透镜的琼斯矩阵又可以改写为

$$\begin{aligned} \mathbf{J}_L &= \exp(i\beta_1 \boldsymbol{\sigma}_z) \exp(i\mu_1 \boldsymbol{\sigma}_x) \exp(i\alpha_1 \boldsymbol{\sigma}_y) = \\ \mathbf{J}_W(2\beta_1) \mathbf{J}_R(-\pi/4) \mathbf{J}_W(2\mu_1) \mathbf{J}_R(\pi/4) \mathbf{J}_R(\alpha_1) &= \\ \exp(i\alpha_2 \boldsymbol{\sigma}_y) \exp(i\mu_2 \boldsymbol{\sigma}_x) \exp(i\beta_2 \boldsymbol{\sigma}_z) &= \\ \mathbf{J}_R(\alpha_2) \mathbf{J}_R(-\pi/4) \mathbf{J}_W(2\mu_2) \mathbf{J}_R(\pi/4) \mathbf{J}_W(2\beta_2). \end{aligned} \quad (19)$$

根据(19)式,聚焦透镜被改为一个旋光器、一个方位角为 45°的内片、一个方位角为 0°的外片级联的系统。比较(19)、(12)式两种模型在测量各向同性薄膜时的差异:

$$\begin{aligned} \mathbf{J}_{\text{sys}} &= \mathbf{J}_{L_2} \mathbf{J}_s \mathbf{J}_{L_1} = \\ \mathbf{J}_R(\alpha_2) \mathbf{J}_R(-\pi/4) \mathbf{J}_W(2\mu_2) \mathbf{J}_R(\pi/4) \times \\ \begin{bmatrix} r_{\text{pp}} & 0 \\ 0 & r_{\text{ss}} e^{-i(2\beta_1+2\beta_2)} \end{bmatrix} \mathbf{J}_R(-\pi/4) \mathbf{J}_W(2\mu_1) \times \\ \mathbf{J}_R(\pi/4) \mathbf{J}_R(\alpha_1), \end{aligned} \quad (20)$$

$$\begin{aligned} \mathbf{J}_{\text{sys}} &= \mathbf{J}_{L_2} \mathbf{J}_s \mathbf{J}_{L_1} = \\ \mathbf{J}_R(\rho_{L_2} - \theta_{L_2}) \mathbf{J}_W(\delta_{L_2}) \mathbf{J}_R(\theta_{L_2}) \begin{bmatrix} r_{\text{pp}} & 0 \\ 0 & r_{\text{ss}} \end{bmatrix} \times \\ \mathbf{J}_R(\rho_{L_1} - \theta_{L_1}) \mathbf{J}_W(\delta_{L_1}) \mathbf{J}_R(\theta_{L_1}). \end{aligned} \quad (21)$$

虽然两种模型在数学上等效,但是在测量各向同性薄膜时,两种模型表现出的自由度并不一样。如(20)、(21)式所示,改写后模型的两内片的相位延迟完全线性相关,6个参数的自由度为5,而改写前模型的自由度仍然是6。由(15)、(16)式可知,两种模型的参数之间存在着直接的关联,所以改写前模型在测量各向同性薄膜时自由度应当也是5,但是改写前模型无法直观显示参数之间的独立性关系。基于这种现象,对于聚焦透镜的高级参数模型,经常使用(20)、(21)式所示的建模方式。

3.2 DRC-MME 直通标定实验的自由度分析

基于改写的聚焦透镜的高级参数模型,分析DRC-MME模型在直通标定实验过程中参数的自由度问题。经过多次标定实验发现,偏振片的高级参数极小,在本文的分析中偏振片被等效为理想模型。根据之前的研究,在偏振片理想的情况下,光源和光谱仪的模型也可以被等效为理想模型^[19]。偏振片的理想模型和光源、光谱仪的理想模型分别是

$$\mathbf{J}_j = \begin{bmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 0 \end{bmatrix}, \quad j = A, P, \quad (22)$$

$$\begin{cases} \mathbf{S}_{\text{in}} = [1 \ 0 \ 0 \ 0]^T \\ \mathbf{S}_{\text{out}} = [1 \ 0 \ 0 \ 0]^T \end{cases} \quad (23)$$

在推导过程中利用相位延迟矩阵 $\mathbf{M}_W(\delta, \epsilon)$ 和旋转矩阵 $\mathbf{M}_R(\theta)$ 的性质:

$$\mathbf{M}_R(x) \mathbf{M}_R(y) = \mathbf{M}_R(x + y), \quad (24)$$

$$\mathbf{M}_W(\delta_1, \epsilon_1) \mathbf{M}_W(\delta_2, \epsilon_2) = \mathbf{M}_W(\delta_1 + \delta_2, \epsilon_1 \epsilon_2). \quad (25)$$

结合此性质,(1)式又可以被写为

$$\begin{aligned} I(t) &= I_0 \mathbf{S}'_{\text{out}} \mathbf{M}'_A \mathbf{M}_R(A - C_2 + \rho_{C_2} - \theta_{C_2}) \mathbf{M}_R(-\omega_2 t) \mathbf{M}_W(\delta_2, \epsilon_{C_2}) \mathbf{M}_R(\omega_2 t) \times \\ &\mathbf{M}_R(\theta_{C_2} + C_2 + \alpha_{L_2}) \mathbf{M}_R(-\pi/4) \mathbf{M}_W(\mu_{L_2}, 1) \mathbf{M}_R(\pi/4) \mathbf{M}_W(\beta_{L_2} + \beta_{L_1}, 1) \times \\ &\mathbf{M}_R(-\pi/4) \mathbf{M}_W(\mu_{L_1}, 1) \mathbf{M}_R(\pi/4) \mathbf{M}_R(\alpha_{L_1} - C_1 + \rho_{C_1} - \theta_{C_1}) \times \\ &\mathbf{M}_R(-\omega_1 t) \mathbf{M}_W(\delta_1, \epsilon_{C_1}) \mathbf{M}_R(\omega_1 t) \mathbf{M}_R(\theta_{C_1} + C_1 - P) \mathbf{M}_P \mathbf{S}'_{\text{in}}. \end{aligned} \quad (26)$$

如(26)式所示,在本次标定实验中,需要标定的是补偿器和聚焦透镜的高级参数以及各种器件的初始方位角,共 18 个参数。

观察(26)式的结构,发现它由相位延迟矩阵函数和旋转矩阵函数间隔组成,待优化参数以独立或复合的形式存在于这些矩阵函数的自变量之中。分

析(26)式所示参数之间的自由度,可以分为两步:先分析矩阵内的复合参数的独立性关系;再分析矩阵之间的参数独立性关系。

将各矩阵内的复合参数使用新的独立参数替代,(26)式可改写为

$$I(t) = I_0 [1, 0, 0, 0] \mathbf{M}_A \mathbf{M}_R(\theta_1) \mathbf{M}_R(-\omega_2 t) \mathbf{M}_W(\delta_2, \epsilon_{C_2}) \mathbf{M}_R(\omega_2 t) \mathbf{M}_R(\theta_2) \times \mathbf{M}_R(-\pi/4) \mathbf{M}_W(\mu_{L_2}, 1) \mathbf{M}_R(\pi/4) \mathbf{M}_W(\theta_5, 1) \mathbf{M}_R(-\pi/4) \times \mathbf{M}_W(\mu_{L_1}, 1) \times \mathbf{M}_R(\pi/4) \mathbf{M}_R(\theta_3) \mathbf{M}_R(-\omega_1 t) \mathbf{M}_W(\delta_1, \epsilon_{C_1}) \mathbf{M}_R(\omega_1 t) \mathbf{M}_R(\theta_4) \mathbf{M}_P [1, 0, 0, 0]^T, \quad (27)$$

$$\theta = \begin{bmatrix} \theta_1 \\ \theta_2 \\ \theta_3 \\ \theta_4 \\ \theta_5 \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} A - C_2 + \rho_{C_2} - \theta_{C_2} \\ \theta_{C_2} + C_2 + \alpha_{L_2} \\ \alpha_{L_1} - C_1 + \rho_{C_1} - \theta_{C_1} \\ \theta_{C_1} + C_1 - P \\ \beta_{L_1} + \beta_{L_2} \end{bmatrix} = \mathbf{W} \mathbf{D}, \quad (28)$$

$$\left\{ \begin{array}{l} \mathbf{W} = \begin{bmatrix} 1 & -1 & 1 & -1 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 & 1 & 1 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 1 & -1 & 1 & -1 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 1 & 0 & 1 & -1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 1 & 1 \end{bmatrix} \\ \mathbf{D} = [A \quad C_2 \quad \rho_{C_2} \quad \theta_{C_2} \quad \alpha_{L_2} \quad \alpha_{L_1} \quad C_1 \quad \rho_{C_1} \quad \theta_{C_1} \quad P \quad \beta_{L_1} \quad \beta_{L_2}]^T \end{array} \right. \quad (29)$$

从(27)式可以看到, \mathbf{D} 中的 12 个高级参数由 5 个独立的新参数代替,对 \mathbf{W} 进行奇异值分解,得到了 5 个非零的奇异值为 2.36, 2.36, 1.20, 1.20, 1.41。 θ 内部的 5 个复合参数是互相独立的,这 12 个参数的自由度为 5。在标定实验过程中,需要将其中的 7 个参数在优化过程之中设为定值。在选择固定参数时需要满足条件:在将这些参数设为定值之后, θ 中的任何一项都不能是定值,以避免在拟合

过程中失去搜寻最优值的机会。关于固定值的选择,偏振片的初始方位角 A, P 可以在表盘上读出,补偿器的初始方位角和旋光角、聚焦透镜的旋光角、内片与外片等效相位延迟都可以被固定为理想值 0。

分析处于两种矩阵之间的参数之间的独立性关系。显然,它们通过旋转矩阵和波片矩阵间隔开来,对两种间隔结构进行展开,得

$$\mathbf{J}_R(\theta_1) \mathbf{J}_W(\delta, \epsilon) \mathbf{J}_R(\theta_2) = \begin{bmatrix} \cos \theta_1 & \sin \theta_1 \\ -\sin \theta_1 & \cos \theta_1 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} 1 & 0 \\ 0 & \epsilon e^{-i\theta} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \cos \theta_2 & \sin \theta_2 \\ -\sin \theta_2 & \cos \theta_2 \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \cos \theta_1 \cos \theta_2 - \epsilon e^{-i\theta} \sin \theta_1 \sin \theta_2 & \cos \theta_1 \sin \theta_2 + \epsilon e^{-i\theta} \sin \theta_1 \cos \theta_2 \\ \cos \theta_1 \sin \theta_2 - \epsilon e^{-i\theta} \sin \theta_1 \cos \theta_2 & \sin \theta_1 \sin \theta_2 + \epsilon e^{-i\theta} \cos \theta_1 \cos \theta_2 \end{bmatrix}, \quad (30)$$

$$\mathbf{J}_W(\delta_1, \epsilon_1) \mathbf{J}_R(\theta) \mathbf{J}_W(\delta_2, \epsilon_2) = \begin{bmatrix} 1 & 0 \\ 0 & \epsilon_1 e^{-i\theta_1} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \cos \theta & \sin \theta \\ -\sin \theta & \cos \theta \end{bmatrix} \begin{bmatrix} 1 & 0 \\ 0 & \epsilon_2 e^{-i\theta_2} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \cos \theta & \epsilon_2 e^{-i\theta_2} \sin \theta \\ -\epsilon_1 e^{-i\theta_1} \sin \theta & \epsilon_1 \epsilon_2 e^{-i(\theta_1 + \theta_2)} \cos \theta \end{bmatrix}. \quad (31)$$

由(30)、(31)式可以看出,对于这两种结构,各个参数之间并不存在很直观的相关性,可以初步认

为处于矩阵之间的各个高级参数之间互相独立。综合上述分析,DRC-MME 系统直通标定实验

时的自由度为 11,在拟合优化过程中,需要将其中的 7 个参数设为定值。

4 实验验证

4.1 仿真验证实验

从理论上推导了 DRC-MME 直通标定实验中

表 1 仿真验证实验的参数设置

Table 1 Setting parameters of simulation verification experiments

Parameter	Setting value	Parameter	Setting value	Parameter	Setting value
A	$90^\circ(+)$	β_{1_2}	-4°	δ_{c_1}	90°
P	$45^\circ(+)$	μ_{1_2}	-10°	C_2	$0^\circ(+)$
α_{1_1}	$0^\circ(+)$	C_1	$0^\circ(+)$	θ_{c_2}	150°
β_{1_1}	$0^\circ(+)$	θ_{c_1}	60°	ρ_{c_2}	1°
μ_{1_1}	12°	ρ_{c_1}	$0^\circ(+)$	ϵ_{c_2}	1
α_{1_2}	0.8°	ϵ_{c_1}	1	δ_{c_2}	90°

表 1 中,带有正号的参量表示在标定实验中被设为定值的参数,此时未被固定的参数数目为 11。根据 3.2 节的分析,无论如何调整初值点,使用优化算法总是可以找到一个最优点,使得理论傅里叶系数 M_c 与实验傅里叶系数完全相同。

将在包含固定值的所有设定值上叠加一个零均值的高斯噪声后的结果作为初值,使用 Levenberg-Marquardt(LM)算法进行拟合优化。设置不同的扰动噪声的方差值 σ^2 ,进行多次重复实验。考虑到优化过程中 LM 算法是一个局部优化算法,所以扰动噪声的方差值不能过大,否则无法找到本存在的全局最优点。以优化结果和目标结果的相对残差的无穷范数 ξ 作为评价指标,表达式为

$$\xi = \left\| \frac{\mathbf{M}_m - \mathbf{M}_c}{\mathbf{M}_{m,\max}} \right\|_\infty, \quad (32)$$

式中: $\mathbf{M}_{m,\max}$ 是原实验傅里叶系数绝对值的最大值。图 2(a)是这一操作的仿真结果, ξ 在 10^{-10} 的数量级。这说明当与最优点偏差值不大时,无论选择什么初值点,LM 算法找到的最优值总能与目标值产生的归一化傅里叶系数完全相符。换言之,在 DRC-MME 直通标定实验的数据拟合过程中,设定这 7 个参数为定值,并不影响优化算法寻找到最优值,自由度 χ 满足:

$$\chi \leq 11. \quad (33)$$

接下来将所有带有正号标识的参数设为定值,并逐个将不带加号的高级参数设为定值。与之前的操作类似,对所有的设定值加入高斯噪声后作为优化算法的初值,然后使用 LM 优化算法进行拟合优

待优化参数的自由度,不过仍可能会忽略一些不直观的非独立性关系,导致 3.2 节的结论出现错误。为了验证 3.2 节结论的正确性,利用仿真实验测量标定实验中自由度。设定各个参数的初始值,根据 (1)式可以模拟生成一组实验傅里叶系数 \mathbf{M}_m ,作为仿真实验的目标值,如表 1 所示。

化操作,计算相对残差值的无穷范数 ξ 。其中,固定 δ_{c_1} 后的优化结果如图 2(b)所示,无论对初值点扰动多少,优化的结果都不能与原先的值完全相同。除了 δ_{c_1} ,对其余 10 个参数进行重复实验,发现实验结果相同。这说明为了保证优化算法可以找到最优解,在优化拟合过程中无法再多固定一个高级参数,本次标定实验的参数自由度 χ 满足:

$$\chi > 10. \quad (34)$$

综合(33)、(34)式,可以得到结论:DRC-MME 直通标定实验数据拟合过程的参数自由度是 11,这也证明了 3.2 节公式推导结果的正确性。

4.2 DRC-MME 直通标定实验及膜厚测量实验

本实验室自制的 DRC-MME 实验平台如图 3 所示。宽谱光源由光纤夹持出光,近似可以看作点光源,通过离轴抛物面镜准直成平行光束,然后在小孔光阑和滤光片作用下形成 400~800 nm 波段的圆形光斑,再通过起偏器、固定在伺服电机上的补偿器、样品、补偿器、检偏器后进入光谱仪中。分析各个波段的光强变化情况。

本实验使用宽谱光源,所以都需要考虑光学元件的高级参数的色散曲线。补偿器和聚焦透镜在 400~800 nm 波段是透明的,因此使用柯西模型^[8]对色散函数进行建模。

$$\begin{cases} \delta = \sum_{k=0}^{n'} \delta_{2k} \left(\frac{\lambda_0}{\lambda}\right)^{2k} \\ \theta = \theta_0 + \gamma \sin \left[\sum_{k=0}^{n'} b_{2k} \left(\frac{\lambda_0}{\lambda}\right)^{2k} \right] \end{cases}, \quad (35)$$

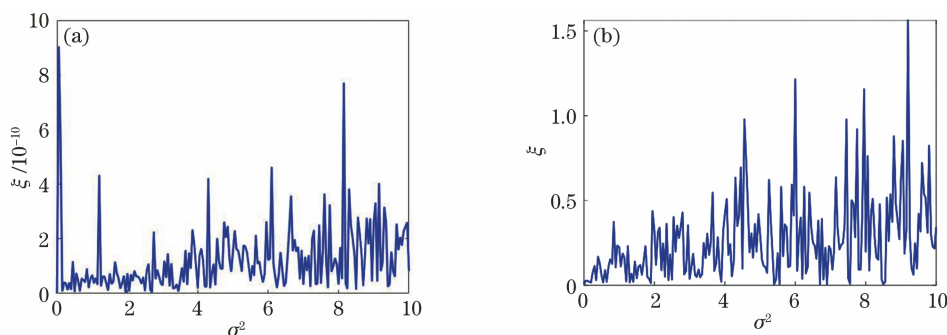


图 2 自由度仿真验证实验结果。(a)固定 7 个参数;(b)固定 8 个参数

Fig. 2 Results of degree of freedom simulation experiment. (a) 7 fixed parameters; (b) 8 fixed parameters

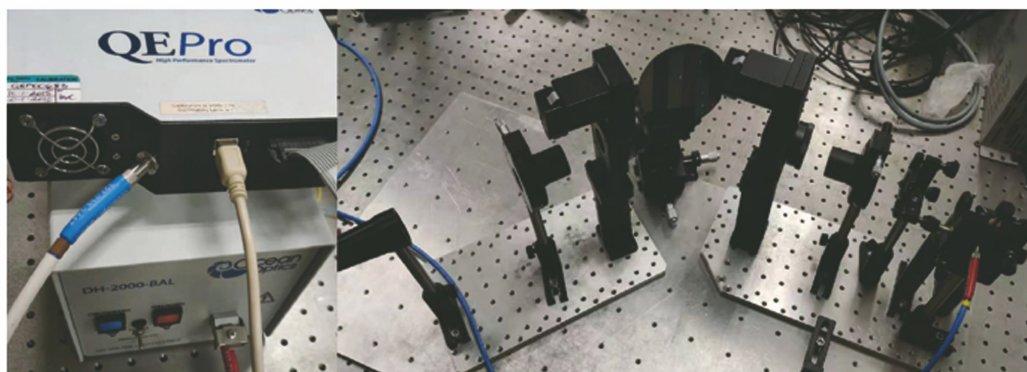


图 3 自制 DRC-MME 装置图

Fig. 3 Setup of home-made DRC-MME

式中: λ_0 是参考波长,在本模型中取 500 nm。拟合过程中柯西项的数目会影响最终的拟合情况,柯西项过多会导致模型过拟合,运行复杂度增加;柯西项过少,系统模型欠拟合,模型无法准确描述器件的真实作用。经过多次实验拟合发现,最佳柯西项数为 6,即(35)式中 $n' = 5$ 。

考虑色散模型后,系统的标定参数量大幅增加,在本拟合过程中,需要标定的高级参数共有 102 个。基于所提自由度分析模型,在拟合过程中将其中的 31 个参数设为定值,大幅降低了需要测量的参数数量。

首先利用搭建好的 DRC-MME 系统测量空气的 Mueller 矩阵,根据自由度分析,将补偿器 1 的旋光角、聚焦透镜 2 的旋光角、内片的相位延迟的高级参数置零,拟合过程中依然可以寻找到全局最优点。基于自由度分析的新模型的测量拟合结果如图 4(a)所示,其中 a 表示实验归一化傅里叶余弦项系数,b 表示实验归一化傅里叶正弦项系数,虚线表示模型的拟合结果, ω_i 表示 i 倍频的信息。拟合结果残差的均方差是 6.7128×10^{-4} ,基本达到了随机噪声的量级,说明了拟合中所使用的模型符合实际情况,证明了建立的高级模型的正确性。不过,拟合结果中还存在部分偏差的现象,这些现象是补偿器的

不均匀、偏振片漏光等效应所导致的退偏效果,不过由于效果较弱,不考虑这一现象。

图 4(b)、(c)分别是补偿器和聚焦透镜的高级参数的标定结果,结果表明两补偿器的相位延迟均在 90° 附近,等效旋光角在 0° 附近,均满足四分之一波片的性质;聚焦透镜的旋光角也在 0° 附近,也近乎符合理想透镜的性质,但是透镜 1 的等效内片和外表的相位延迟均达到了不可忽略的量级,这是透镜在固定时支架应力产生的双折射效应导致的结果。从总体上看,光学元件的高级参数的标定结果基本符合预期结果,这证明了自由度分析结论的合理性。后续对 LM 算法的优化初值点施加随机扰动,进行多次重复实验,标定结果与图 4 完全相同,这证明了这种数据拟合方法最优结果的唯一性。

图 5 是未将部分高级参数设为定值时的其中一次测量结果,拟合效果几乎一致。不过此次标定结果中各补偿器和聚焦透镜的旋光性均很明显,显然这与真实情况并不相符。利用多次改变 LM 算法设定的初值进行重复实验,每次标定结果均不相同,这说明此时使用的拟合模型是过拟合的,系统中存在着“无用”参数。另一方面,此次数据拟合算法过程中,模型迭代计算了 17827 次;而将部分参数设置

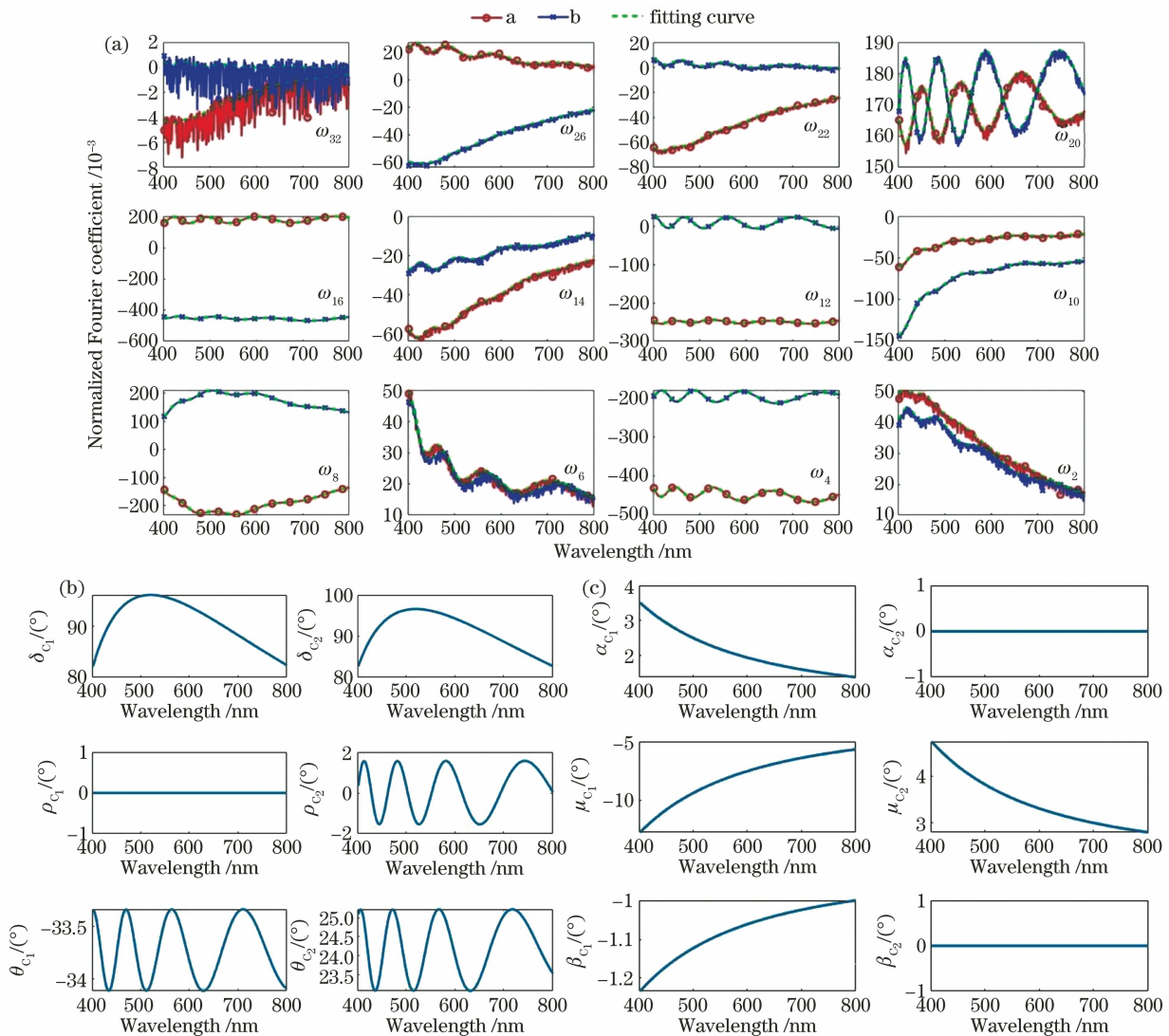


图 4 直通标定实验结果。(a)拟合结果;(b)补偿器参数标定结果;(c)聚焦透镜参数标定结果

Fig. 4 Results of straight-through calibration experiment. (a) Fitting results; (b) parameter calibration results of compensator; (c) parameter calibration results of focus lens

为定值的拟合算法,模型仅迭代运行了 2374 次。基于自由度分析的新模型在保证模型不失配的前提下,大幅提升了运算速度。

使用 DRC-MME 对海洋光学硅衬底二氧化硅的标准样品进行测量,待测薄膜的厚度标称值是 53.3 nm,入射角为 60°。使用之前的标定结果作为光学元件的参数值,最佳的拟合结果如图 6 所示。实验结果拟合残差的标准差为 9.15×10^{-4} ,100 次重复膜厚测量的均值是 55.2760 nm,一倍标准差为 5.31 pm。在这个阶段,拟合误差相对于直通标定的标准差显著增大,造成这个现象的原因有很多:测量薄膜时,光强被吸收,光谱仪接收信号光强减小,从而导致系统噪声增大;在建立的薄膜模型中,使用的折射率是对 Herzinger 等^[20]的测量结果进行插值

后得到的,而由于杂质和灰尘等原因,实际样品的折射率曲线会略有不同;忽略薄膜表面的粗糙性及聚焦透镜的有限数值孔径的退偏效应等非理想效应引起的系统建模误差等。

5 结 论

在椭偏测量中,直通式标定法相当于一种以空气作为标准样品,可以准确标定出系统模型参数的标定方法。对于 DRC-MME 高级参数模型,由于部分高级参数之间存在相互级联和耦合,在直通标定过程中往往出现过拟合的情况,产生多组参数标定结果,因而导致错误的测量结果。从椭偏测量的建模入手,采用奇异值分解、泡利矩阵等工具,从理论分析和仿真验证两方面对 DRC-MME 系统直通标

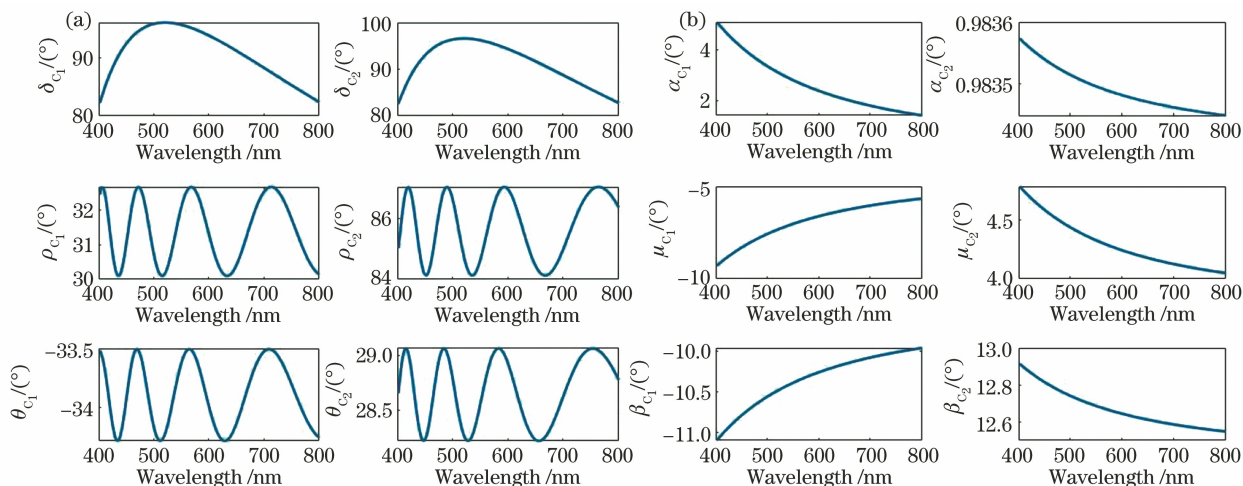


图 5 原模型直通标定实验结果。(a)补偿器参数标定结果;(b)聚焦透镜参数标定结果

Fig. 5 Straight-through calibration experiment results of original model. (a) Parameter calibration results of compensator; (b) parameter calibration results of focus lens

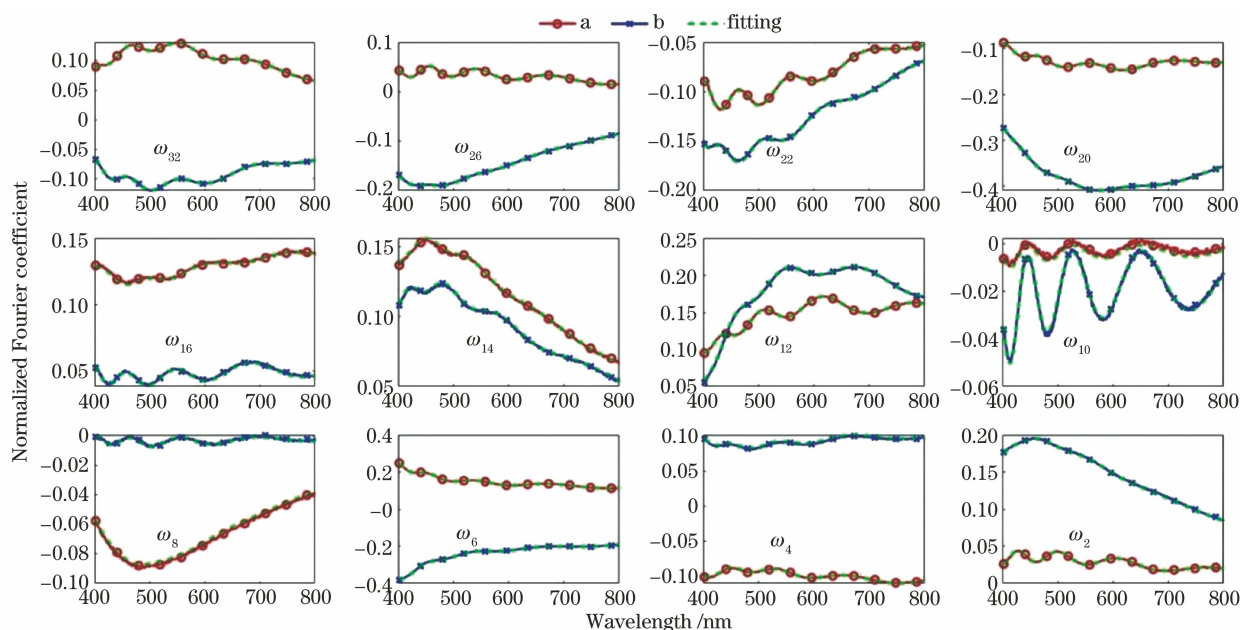


图 6 二氧化硅薄膜膜厚测量结果

Fig. 6 Silicon dioxide film thickness measurement results

定过程中的自由度进行了研究分析,明确了在数据拟合过程中的“无用”参数,得到了直通标定模型的自由度。对于“无用”参数,可在拟合过程中设为固定值进行处理。后续搭建实验平台,进行了对比实验,结果表明:事先对标定模型进行自由度分析,可以有效降低原模型复杂度,减少拟合参数个数,得到稳定唯一且符合物理意义的高级参数标定结果。采用所提方法标定的系统参数,测量了硅基底二氧化硅薄膜厚度,可以达到纳米级的测量精度,皮米级的重复测量精度。所提自由度分析方法适用于一切 DRC-MME 系统的标定过程,也可以被应用于其他

多参数优化领域。

参 考 文 献

[1] Li J Q, Yan J F, Li X, et al. Research advancement on ultrafast laser microprocessing of transparent dielectrics[J]. Chinese Journal of Lasers, 2021, 48 (2): 0202019.
李佳群, 闫剑锋, 李欣, 等. 透明介质材料的超快激光微纳加工研究进展[J]. 中国激光, 2021, 48(2): 0202019.

[2] Luo S, Wang J Q, Zhang B. Influence of fatigue characteristics of piezoelectric ceramics actuators on

- correction ability of deformable mirror[J]. Chinese Journal of Lasers, 2018, 45(9): 0905002.
- 罗帅, 王家秋, 张彬. 压电陶瓷驱动器疲劳特性对变形镜校正能力的影响[J]. 中国激光, 2018, 45(9): 0905002.
- [3] Shi Y J, Zhang Z H. Linearly polarized photoacoustic imaging based on anisotropic optical absorption[J]. Chinese Journal of Lasers, 2019, 46(8): 0807001.
- 石玉娇, 张振辉. 基于各向异性光吸收的线偏振光声成像[J]. 中国激光, 2019, 46(8): 0807001.
- [4] Losurdo M, Hingerl K. Ellipsometry at the nanoscale[M]. Heidelberg: Springer, 2013.
- [5] Hinrichs K, Eichhorn K J. Ellipsometry of functional organic surfaces and films [M]. Heidelberg: Springer, 2014.
- [6] Hilfiker J N. *In situ* spectroscopic ellipsometry (SE) for characterization of thin film growth[M]//Koster G, Rijnders G. *In situ* characterization of thin film growth. Amsterdam: Elsevier, 2011: 99-151.
- [7] Fujiwara H, Collins R W. Spectroscopic ellipsometry for photovoltaics[M]. Cham: Springer, 2018.
- [8] Arteaga O, Baldris M, Antó J, et al. Mueller matrix microscope with a dual continuous rotating compensator setup and digital demodulation [J]. Applied Optics, 2014, 53(10): 2236-2245.
- [9] Gu H G, Chen X G, Jiang H, et al. Optimal broadband Mueller matrix ellipsometer using multi-waveplates with flexibly oriented axes[J]. Journal of Optics, 2016, 18(2): 025702.
- [10] Liu N L. Research on mid-infrared Mueller matrix spectroscopic ellipsometer [D]. Wuhan: Huazhong University of Science and Technology, 2019.
- 刘柠林. 中红外穆勒矩阵椭偏测量系统研究[D]. 武汉: 华中科技大学, 2019.
- [11] Fujiwara H. Spectroscopic ellipsometry: principles and applications [M]. Chichester: John Wiley & Sons, 2007.
- [12] Li S F. Jones-matrix analysis with Pauli matrices: application to ellipsometry[J]. Journal of the Optical Society of America A, 2000, 17(5): 920-926.
- [13] Gu H G, Liu S Y, Chen X G, et al. Calibration of misalignment errors in composite waveplates using Mueller matrix ellipsometry [J]. Applied Optics, 2015, 54(4): 684-693.
- [14] Li W Q, Zhang C W, Jiang H, et al. Depolarization artifacts in dual rotating-compensator Mueller matrix ellipsometry[J]. Journal of Optics, 2016, 18(5): 055701.
- [15] Fan Z T, Tang Y Y, Wei K, et al. Calibration of focusing lens artifacts in a dual rotating-compensator Mueller matrix ellipsometer [J]. Applied Optics, 2018, 57(15): 4145-4152.
- [16] Song G Z, Liu T, Chen Y Q, et al. Calibration of spectroscopic ellipsometer using multiple standard samples [J]. Acta Optica Sinica, 2014, 34(3): 0312003.
- 宋国志, 刘涛, 谌雅琴, 等. 利用多个标准样品校准光谱椭圆偏振仪[J]. 光学学报, 2014, 34(3): 0312003.
- [17] Fan Z T. Research on the advanced parameters problem of Mueller matrix ellipsometry system[D]. Beijing: University of Chinese Academy of Sciences, 2019.
- 范真涛. 穆勒矩阵椭偏测量系统高级参数问题研究[D]. 北京: 中国科学院大学, 2019.
- [18] Zeng G, Lee M H. Fast block jacket transform based on Pauli matrices [C]//2007 IEEE International Conference on Communications, June 24-28, 2007, Glasgow, UK. New York: IEEE Press, 2007: 2687-2692.
- [19] Fan Z T, Tang Y Y, Wei K, et al. Measurement of polarization correlation coefficients of light source and spectrometer in spectroscopic ellipsometry[J]. Opto-Electronic Engineering, 2019, 46(12): 180507.
- 范真涛, 汤媛媛, 魏凯, 等. 光谱椭偏系统光源和光谱仪偏振相关系数测量[J]. 光电工程, 2019, 46(12): 180507.
- [20] 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.