

石英晶体振荡法监控膜厚研究*

占美琼 张东平 杨健 贺洪波 邵建达 范正修

(中国科学院上海光学精密机械研究所,上海市 800-211 信箱,上海 201800)

摘要 给出了石英晶体振荡法监控膜厚的基本原理,在相同的工艺条件下分别用光电极值法和石英晶体振荡法监控膜厚,对制备的增透膜的反射光谱曲线进行了比较,并对石英晶体振荡法的监控结果做了误差分析.结果表明:石英晶体振荡法不仅膜厚监控精度高,而且能监控沉积速率,获得稳定的膜层折射率,从而有效地控制薄膜的光学性能.

关键词 光学薄膜;石英晶体振荡法;光电极值法;工具因子;误差

中图分类号 O484 **文献标识码** A

0 引言

对于光学薄膜来说,厚度是除折射率之外最重要的参数,因此准确控制薄膜的厚度就成为制备光学薄膜的关键^[1].目前薄膜制备过程中厚度的实时监控,大都采用光电极值法和石英晶体振荡法.光电极值法由于在极值点附近光信号对薄膜厚度变化最不灵敏,要及时准确地判断极值点比较困难,而且只能控制1/4波长或其整数倍厚度的膜层.随着光学薄膜应用的日趋广泛,对薄膜的要求越来越高,为了满足这些要求,需要设计任意厚度的膜系,这就提出了非1/4波长膜层厚度的控制问题,采用石英晶体振荡法监控膜厚,该问题就可以迎刃而解.这种方法监控膜厚具有操作简单,灵敏度高的优点,而且可以实现自动控制.

1 石英晶体振荡法监控膜厚的原理

石英晶体振荡法监控膜厚,主要是利用了石英晶体的压电效应和质量负荷效应,通过测定其固有谐振频率或与固有谐振频率有关的参量变化来监控淀积薄膜的厚度^[2].其基本原理^[3]如下:

石英晶体压电效应的固有谐振频率与厚度的关系为

$$f_0 = N/d \quad (1)$$

式中 f_0 是石英晶体的固有谐振频率, N 是频率常数,其值为1670 kHz·mm, d 是晶体厚度.对式(1)微分,得

$$\Delta f_0 = -N\Delta d/d^2 \quad (2)$$

再利用下列关系式

$$\Delta m = A\rho_f\Delta d_f = A\rho_0\Delta d \quad (3)$$

式中, A 是晶体被镀面积, ρ_f 是膜层密度, ρ_0 为石英密度,其值为2.65 g/cm², Δd_f 是沉积薄膜的厚度,得到

$$\Delta d = \rho_f\Delta d_f/\rho_0 \quad (4)$$

将式(4)代入式(2),得到

$$\Delta f_0 = -N\rho_f\Delta d_f/d^2\rho_0 \quad (5)$$

再将式(1)代入后得到

$$\Delta f_0 = -f_0^2\rho_f\Delta d_f/N\rho_0 = (-f_0^2\rho_f/N\rho_0)\Delta d_f \quad (6)$$

由于 f_0 是石英晶体的固有谐振频率, ρ_f 对既定材料是已知的,在膜层不是很厚,石英晶体的固有谐振频率变化不是很大时,可以近似地把 $f_0^2\rho_f/N\rho_0$ 看成常数.于是式(6)表达的石英晶体频率的变化 Δf_0 与淀积薄膜的厚度 Δd_f 为线性关系.所以可以借助检测石英晶体固有谐振频率的变化,实现对膜厚的监控.显然随着镀膜时膜层厚度的增加,频率单调地线性下降,观察方便,不会出现光电极值法监控系统中控制信号的起伏.这种计算膜厚的方法假定了沉积的膜层没有改变石英晶体的谐振频率,而实际上沉积的膜层已经改变了石英晶体的谐振频率,由单一材料的振荡模式变成二种材料的混合振荡模式^[2],考虑到这一点,石英晶控仪采用了声阻抗法测厚的公式,即

$$\Delta d_f = (\rho_0/\rho_f)N(\tau/\pi R_z) \cdot \arctan[R_z \tan \pi(\tau - \tau_0)/\tau] \quad (7)$$

式中, τ 是沉积薄膜后石英晶体的谐振周期, τ_0 是石英晶体的固有谐振周期, R_z 是石英晶体与膜层的声阻抗比值.

定义

$$\tau = 1/f, \tau_0 = 1/f_0, \Delta f = f_0 - f$$

式中, Δf 是沉积薄膜后石英晶体谐振频率的变化量, f 是沉积薄膜后石英晶体的谐振频率.则式(7)可简化为

$$\Delta d_f = (\rho_0/\rho_f)(N/\pi f R_z) \arctan(R_z \tan \pi \Delta f/f_0) \quad (8)$$

理论上石英晶振片的寿命从99%(没有沉积薄膜的

*国家863高技术计划课题的资助项目(863-804-2)
Tel:021-69918494 Email:hbhmzmq@siom.ac.cn
收稿日期:2003-06-02

晶振片的寿命)降到 0,对应的频率下降 1.5 MHz (没有沉积薄膜的晶振片的谐振频率是 6 MHz),实际使用中石英晶振片的寿命最多只能降到 90%,因此相应地可以计算出 $\Delta f/f_0 < 2.5\%$, 此时有 $\pi\Delta f/f_0 \ll \pi/2$, 所以式(8)可以用泰勒级数展开,并忽略高次项得

$$\Delta d_f = (\rho_Q/\rho_f)(N/\pi f R_z) \arctan(R_z \pi \Delta f/f_0) \quad (9)$$

由于大部分膜料的 $R_z < 1$, 所以 $R_z \pi \Delta f/f_0 \ll 1$, 于是式(9)可以用泰勒级数展开,并忽略高次项得

$$\Delta d_f = (\rho_Q/\rho_f)(N/\pi f R_z)(R_z \pi \Delta f/f_0) = (\rho_Q/\rho_f)(N\Delta f/f_0) \quad (10)$$

由于 f 变化很小,近似 $f = f_0$, 得

$$\Delta d_f = (\rho_Q/\rho_f)(N/f_0^2)\Delta f \quad (11)$$

对具体的膜料, $(\rho_Q/\rho_f)(N/f_0^2)$ 是常数,所以 Δd_f 与 Δf 就呈线性关系,即该式体现了膜厚与石英晶体谐振频率变化的关系。

如果 Δf 过大,式(9)和式(10)的高次项就不能忽略,上面推导的线性关系就不能很好地符合,晶控仪的监控精度就受到影响。所以,为了保证晶控仪的监控精度,石英晶振片在沉积了一定厚度的薄膜后(石英晶控仪会显示)就要更换或清洗。

2 实验

实验采用北京真空仪器厂生产的 ZZSX-1100 真空镀膜机和美国 Telemark 公司生产的 Model 860 石英晶控仪。该晶控仪可以显示每个时刻的膜厚值和膜料的蒸发速率(晶控仪读数的灵敏度分别为 0.1 nm 和 0.01 nm/s)。

要用石英晶体振荡法监控膜厚,首先要做实验确定每种膜料的工具因子。在相同的工艺条件下每种膜料的工具因子实验重复 3 次,取其平均值得出工具因子(实际镀膜中保持工艺条件的一致性),然后在与确定工具因子实验同样的条件下,用光电极值法和石英晶体振荡法分别监控制备增透膜。先用膜系设计软件(基于光电极值法监控)设计了 0° , 1064 nm 增透的 4lh2l 膜系(参考波长 640 nm)和 45° , 351 nm 和 1053 nm 双波长 p 分量增透的 2a2l 膜系(参考波长 580 nm),得出每层膜的厚度,再根据该种膜料的工具因子,计算出晶控仪中每层膜应设定的膜厚,然后用晶控仪监控镀制,用 Lambda900 分光光度计测量该增透膜的反射光谱曲线,并与用光电极值法监控的结果比较。最后设计了在相同的工艺条件下,用晶控仪监控沉积速率制备 ZrO_2 单层膜的实验,分析了沉积速率稳定性对薄膜光学性能的影响。

3 实验结果及分析

3.1 工具因子的确定

根据单层膜的透射率光谱曲线,计算出膜厚 d_0 , 则工具因子(tooling factor, TF)为

$$TF = d_0/\Delta d_f \quad (12)$$

式中, Δd_f 是晶控仪上显示的膜厚值,工具因子的计算结果见表 1。根据表 1 中最大误差数值,用式(12)就可以计算出相应膜层的实际厚度误差范围。

表 1 三种常用膜料的工具因子的实验结果

膜料	工具因子平均值	最大误差
ZrO_2	0.673	2.96%
SiO_2	0.754	3.05%
Al_2O_3	0.681	1.28%

3.2 二种监控方法的结果对比

表 2 是在同样的工艺条件下,分别用石英晶体振荡法和光电极值法监控制备由 ZrO_2 (h) 和 SiO_2 (l) 组成的 4lh2l 膜系(0° , 1064 nm 增透)的光谱曲线结果。从表 2 看出,用石英晶体振荡法监控制备的薄膜光学性能较好。

表 2 二种方法监控制备的 0° , 1064 nm 增透的 4lh2l 膜系的反射率和中心波长

监控方法	极值点波长/nm	极值点反射率/(%)	1064 nm 处反射率/(%)	极值点波长误差
石英晶体振荡法监控	1068	0.121	0.122	0.376%
光电极值法监控	1135	0.452	1.300	6.67%

图 1、图 2 分别是石英晶体振荡法监控制备的薄膜的光谱曲线(实线)和软件模拟的曲线以及光电极值法监控制备的薄膜的光谱曲线的对比图。图 1 是由 ZrO_2 (h) 和 SiO_2 (l) 组成的 4lh2l 膜系(0° , 1064 nm 增透)。图 2 是 Al_2O_3 (a) 和 SiO_2 (l) 组成的 2a2l 膜系(45° , 351 nm 和 1053 nm 双波长 p 分量增透)。需要说明的是图 2 中的曲线都是 0° 入射角测量的结果,这是因为 0° 剩余反射的测试较 45° 容易实现得多而且不影响实验结果分析。图 2 中晶控曲线的剩余反射比理论设计的还要低,主要由于这二种增透膜系均不是剩余反射为零的最佳匹配膜系

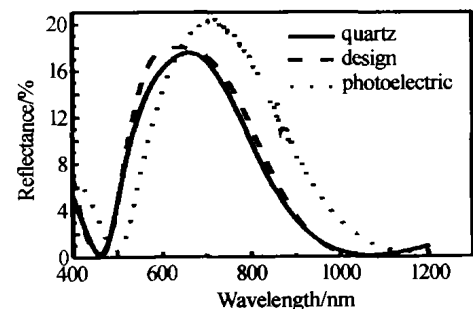


图 1 0° , 1064 nm 增透的 4lh2l 膜系反射率曲线
Fig. 1 The reflectance of anti-reflective coating (0° , 1064 nm AR)

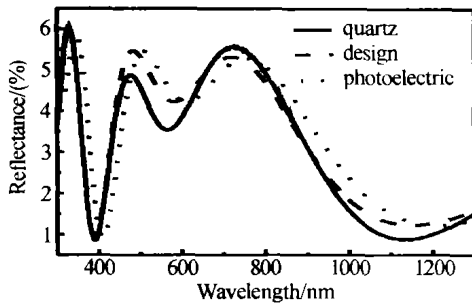


图 2 45°双波长 p 分量增透的 2a21 膜系反射率曲线 (0°测量结果)

Fig. 2 The reflectance of dual-wavelength anti-reflective coating (measured at 0 degree)

(但是从光学性能、监控的难易以及抗激光损伤等综合考虑是最常用的增透膜系),而在实际镀制中由于薄膜厚度误差以及工艺的随机误差等有可能刚好达到较好的匹配从而实现较理想的增透效果.从图 1 和图 2 可以看出,用石英晶体振荡法监控制备的增透膜与模拟曲线符合得较好,这主要是由于石英晶体振荡法有较高的膜厚控制精度,并能相对稳定地监控薄膜的折射率,下面将对此作进一步的分析.

3.3 误差分析

为了进一步说明石英晶体振荡法有较高的膜厚控制精度,把 ZrO_2 、 SiO_2 、 Al_2O_3 的工具因子的最大误差(分别为 2.96%、3.05%、1.28%)加到软件模拟曲线中,得到图 3 和图 4,其中每个图中的二条虚线分别是每层厚度都给了对应的最大正、负误差的结果.图 3 是 $ZrO_2(h)$ 和 $SiO_2(l)$ 组成的 4lh2l 的增透膜模拟的结果,图 4 是 $Al_2O_3(a)$ 和 $SiO_2(l)$ 组成的 2a2l 的增透膜模拟的结果.表 3 和表 4 分别是对应图 3 和图 4 结果的误差分析.从表 3 和表 4 可以看出,当给定正误差时,极值波长会增大,反之,给定

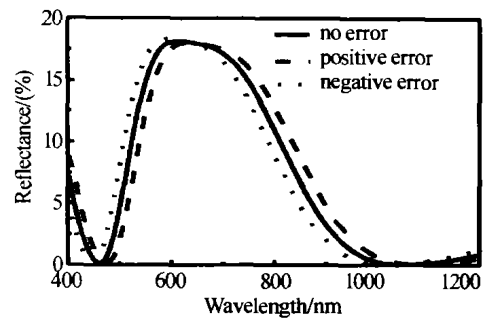


图 3 0°,1064 nm 增透膜厚度误差对反射率的影响

Fig. 3 Influence of thickness error on reflectance (0°,1064 nm AR)

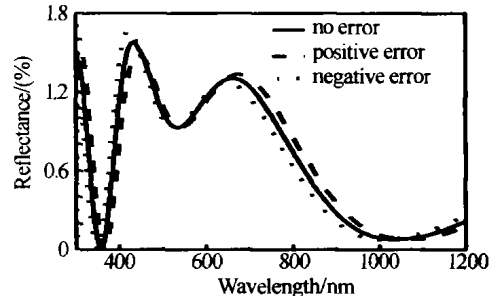


图 4 45°,351 和 1053 nm 双波长 p 分量增透膜厚度误差对反射率的影响

Fig. 4 Influence of thickness error on reflectance (45° polarization, 351 nm and 1053 nm AR)

负误差时,极值波长会减小.给定误差后整个膜系相当于变成一个非 1/4 波长的增透膜系,按照每个界面的振幅反射系数矢量法^[4]合成结果,薄膜厚度的变化会引起减反效果或增或减的变化.图 3、图 4 和图 1、图 2 对比发现即使理论给予工具因子的最大误差后,模拟曲线的误差还是比单独用光电极值法监控的小,而在实际镀膜中用石英晶体振荡法监控膜厚的误差是小于这个最大误差的.图 3 和图 4 的理论模拟证实了图 1 和图 2 中晶控曲线更接近理论设计曲线的原因之一是其膜厚控制精度较高.

表 3 4lh2l 膜系 (0°,1064 nm 增透) 给定误差后极值和反射率变化

4lh2l 膜系变化	最小反射率		最小反射率对应的波长		1064 nm 处
	反射率值/(%)	误差/(%)	波长值/nm	误差/(%)	反射率/(%)
不改变膜厚	0.0293		1052		0.0390
每层厚度增加	0.0298	1.71	1083	2.95	0.0555
每层厚度减少	0.0284	-3.04	1020	-3.04	0.1388

表 4 2a2l 膜系 (45°,双波长 p 分量增透) 给定误差短波段极值和反射率变化

2a2l 膜系变化	短波段最小反射率		最小反射率对应的波长		351 nm 处反
	反射率值/(%)	误差/(%)	波长值/nm	误差/(%)	射率/(%)
不改变膜厚	0.0043		357		0.0389
每层厚度增加	0.0046	6.98	365	2.24	0.2138
每层厚度减少	0.0043	0.00	348	-2.52	0.0128

3.4 监控沉积速率的结果

图 5 是晶控仪实时监控单层 ZrO_2 的沉积速率曲线,晶控仪中设定沉积速率为 0.3 nm/s.从图中可以看出,除了开始定位和 500 s 左右换焦斑时沉积速率有波动外,总的说来沉积速率相对稳定,在真空度

和基底温度等其它工艺条件都固定不变的情况下,沉积速率较稳定可推断薄膜的折射率也较稳定.

晶控仪既可以较稳定地控制薄膜的折射率,又有较高的膜厚控制精度,从而使薄膜的光学性能得到很好的控制.在实际实验中可以根据需要设定并

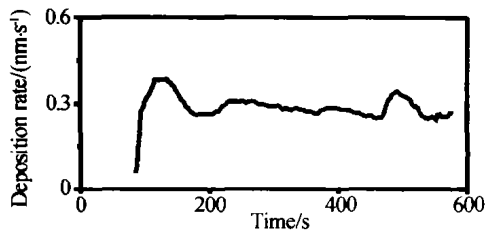


图5 薄膜的沉积速率与时间的关系

Fig. 5 Relations between deposition rate and time

监控沉积速率. 用光电极值法则无法直接地监控沉积速率.

4 结论

石英晶体振荡法作为一种薄膜监控的方法,它监控薄膜厚度产生的信号容易判读,用该方法监控制备的增透膜光谱性能比单独用光电极值法监控制备的更接近理论设计结果. 晶控仪既可以较稳定地控制薄膜的折射率,又有很高的膜厚控制精度,从而使薄膜的光学性能得到很好的控制. 另外,由于石英晶体振荡法监控的是薄膜的物理厚度,所以可以监控任意厚度的膜层,特别适用于各种非规整膜系

的厚度控制. 为了保证晶控仪的监控精度,石英晶振片在沉积了一定厚度的薄膜后(石英晶控仪会显示)就要更换或清洗.

参考文献

- 1 许世军. 薄膜厚度测控技术中的物理原理. 物理与工程, 2001, 11(2): 38 ~ 41
Xu S J. *Physics and Engineering*, 2001, 11(2): 38 ~ 41
- 2 林永昌, 卢维强. 光学薄膜原理. 北京: 国防工业出版社, 1990. 332 ~ 334
Lin Y C, Lu W Q. *The Principles of Optical Thin Film*. Beijing: National Defence Industry Press, 1990. 332 ~ 334
- 3 顾培夫. 薄膜技术. 杭州: 浙江大学出版社, 1990. 169
Gu P F. *The Technology of Thin Film*. Hangzhou: Zhejiang University Press, 1990. 169
- 4 H. A. 麦克劳德著, 周九林, 尹树百译. 光学薄膜技术. 北京: 国防工业出版社, 1974. 41
Macleod H A. translated by Zhou J L, Yin S B. *Thin-film Optical Filters*. Beijing: National Defence Industry Press, 1974. 41

Thickness Monitoring by Quartz Crystal Oscillation for Optical Coatings

Zhan Meiqiong, Zhang Dongping, Yang Jian, He Hongbo, Shao Jianda, Fan Zhengxiu

Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, Chinese Academy of Sciences P. O. Box: 800-211, Shanghai 201800

Received date: 2003-06-02

Abstract The thickness monitoring methods of optical coatings mainly include photoelectric extremum method and quartz crystal oscillation method. The principle of coating thickness monitoring by quartz crystal oscillation is proposed. Coating thickness is monitored by the two monitoring methods respectively under the same process. Influence of thickness error is analysed. In contrast with photoelectric extremum method, quartz crystal oscillation method not only has a high degree of accuracy for controlling thickness but also can monitor deposition rate, so it can get better optical performance.

Keywords Optical coatings; Quartz crystal oscillation; Photoelectric extremum method; Tooling factor; Error



Zhan Meiqiong was born in 1978, in Hubei Province, graduated from Central South University. Now she is a Ph. D. candidate of Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, Chinese Academy of Sciences. Her research interests includes optical coatings thickness monitoring and preparation of high power laser coatings.