

光学薄膜参数测量方法研究

李凯朋,王多书,李晨,王济州,董茂进,张玲

(兰州空间技术物理研究所 表面工程技术重点实验室,甘肃 兰州 730000)

摘要: 为了研究准确性和效率更高的膜层光学薄膜参数测量方法,对优化膜系结构和改进制备工艺都有重要的指导作用。论文在研究传统测量方法基础上,将包络线法与全光谱拟合反演法相结合,提出了一种新型的光学薄膜参数测量方法。该方法将采用包络线法计算的单层膜光学薄膜参数近似值作为参考,设置全光谱拟合反演法优化搜索的上下限,结合适当的评价函数构建计算物理模型,并选用综合优化算法求解获得待测膜系各膜层的光学薄膜参数。最后设计 TiO_2 、 SiO_2 单层膜和膜系为:G|0.5HLHL0.5H|A(H- TiO_2 ,L- SiO_2)的多层膜进行测量验证,并分析了该测量方法的效率、准确度、稳定性等。

关键词: 光学薄膜; 光学薄膜参数; 包络线法; 全光谱拟合反演法; 包络线-全光谱拟合反演法
中图分类号: O484 **文献标志码:** A **文章编号:** 1007-2276(2015)03-1048-05

Study on optical thin film parameters measurement method

Li Kaipeng, Wang Duoshu, Li Chen, Wang Jizhou, Dong Maojin, Zhang Ling

(Science and Technology on Surface Engineering Laboratory, Lanzhou Institute of Space Technology and Physics,
Lanzhou 730000, China)

Abstract: Studying more precise and efficient measuring-method for determining optical parameters of thin films plays a guiding role in improving design and optimizing preparation process of optical thin films. Several traditional measuring-methods were introduced briefly in this paper, and a new measuring-method was deduced combined envelope with the full spectrum inversion method fitting. In this method, optical parameters of a single layer were calculated approximately with envelope method, and according to the results, the upper and lower limits of the optical parameters were estimated for the full spectrum inversion method fitting firstly. Then, the physical model of the new method was established. After that, the optical parameters of thin films were solved by choosing a comprehensive optimization algorithm. Finally, the validity of the new method was validated through measuring of TiO_2 、 SiO_2 single-layer and G|0.5HLHL0.5H|A (H- TiO_2 ,L- SiO_2) multilayer. Besides, the measurement accuracy, efficiency and stability of the new method were also analyzed.

Key words: optical film; optical thin film parameters; envelope method;
full spectral fitting inversion method; envelope-full spectral fitting inversion method

收稿日期:2014-07-05; 修订日期:2014-08-03

作者简介:李凯朋(1988-),男,硕士生,主要从事光学薄膜参数反演计算方面的研究。Email:13259756785@163.com

通讯作者:王多书(1973-),男,硕士生导师,博士,主要从事空间光学薄膜技术方面的研究。Email:wang_d_s@sina.com

0 引言

近年来,随着光学薄膜在空间遥感、精密光学以及高质量投影与显示等领域应用的不断深入,设计并制备出高精度、高性能光学薄膜成为众多研究机构和光学薄膜企业的共同追求。光谱特性是光学薄膜器件的重要性能指标,它的好坏直接反映了该光学薄膜器件的性能优劣。薄膜系统的光谱性能(如:透射率或反射率)可由各膜层的折射率、消光系数、厚度精确计算得到,通常将折射率、消光系数、膜层厚度称作膜层的光学薄膜参数。实际光学薄膜研制过程中,如果能快速准确测量实际镀制膜系各膜层的光学薄膜参数,对优化膜系结构和改进制备工艺都有重要作用。

目前,膜层光学薄膜参数的测量方法主要包括:棱镜耦合法^[1]、椭圆偏振法^[2]、单波点法、包络线法^[3-5]、全光谱拟合反演法^[6-7]等。其中棱镜耦合法、单波点法、包络线法仅用于测量单层膜的光学薄膜参数,测量效率高,但准确性低。椭圆偏振法和全光谱拟合反演法主要测量膜系各膜层的光学薄膜参数,测量准确性高,但这两种方法数值求解的效率、准确性、稳定性对物理模型和优化算法的依赖性很强,物理模型和优化算法选用不合适,测量的准确性和效率都会急剧下降,稳定性也变差。截至目前,仍没有一种有效方法可以快速准确的测量任意膜层的光学薄膜参数。因此,文中通过改进包络线法和全光谱拟合反演法的局限性,研究了一种将包络线法和全光谱拟合反演法相结合的新型测量方法,以提高膜层光学薄膜参数的测量效率、准确性以及稳定性。

1 包络线法与全光谱拟合反演法

1.1 包络线法

包络线法是利用膜层厚度为四分之一参考波长整数倍时,出现的透射率极值 $T_{N/2}$ 和 $T_{N/4}$ 计算该膜层的光学薄膜参数。实际测量时,分别连接透射率光谱曲线上系列极大值点与极小值点,形成两条包络线 $T_{\max}(\lambda)$ 和 $T_{\min}(\lambda)$ 。将包络线上各点的透射率值(T_{\max} 和 T_{\min})作为对应波长透射率极值的近似值。然后依据光学薄膜理论可求解膜层的折射率为:

$$n_f = (N + (N^2 - n_0^2 n_s^2)^{1/2})^{1/2} \quad (1)$$

式中: $N = n_0^2 + n_s^2 / 2 + 2n_0 n_s (1/T_{\min} - 1/T_{\max})$, 其中 n_0 、 n_s 分别

为空气和基底的折射率。膜层的消光系数为:

$$k = -\lambda \ln((-B \pm (B^2 + 4AC)^{1/2}) / 2A) / 4\pi d \quad (2)$$

式中: $A = 4n_s n_f (n_f - n_0)^2 R_s / T_s - [(n_f - n_0)(n_0 - n_f)]^2$; $B = 8n_0 n_f^2 (1/T_{\max} + 1/T_{\min})$; $C = 4n_s n_f (n_f + n_0)^2 R_s / T_s + [(n_f + n_0)(n_0 + n_f)]^2$ 。由极值点波长和膜层的折射率可求解膜层的厚度为:

$$d = \lambda_1 \lambda_2 / 2[n(\lambda_1)\lambda_2 - n(\lambda_2)\lambda_1] \quad (3)$$

式中: λ_1 、 λ_2 为相邻两个透射率极大值(或极小值)点处的波长。

包络线法测量过程简单,效率高。但当膜层厚度较小或膜层吸收过大时,构建包络线的透射率极值点数量会很少,此时构建的包络线误差很大,测量准确性低,稳定性也差。因此该方法仅用于测量膜层厚度较大、吸收较小的单层膜的光学薄膜参数。

1.2 全光谱拟合反演法

全光谱拟合反演法是基于数值优化的思想,将膜系各膜层光学薄膜参数的测量问题转化为数值优化问题来处理,依据膜系在使用波长范围内的透射率(或反射率)测量值反演计算膜系各膜层的光学薄膜参数。以透射光谱为例,依据膜系透射率实际测量值 $\tilde{T}(\lambda)$ 和理论计算值 $T(\lambda)$ 的差值构建评价函数形式如下:

$$\text{Merit} = \int_{\lambda_b}^{\lambda_a} \omega(\lambda) [T(\lambda) - \tilde{T}(\lambda)] d\lambda \quad (4)$$

式中: λ_b 、 λ_a 分别为测量波长范围的上下界; $\omega(\lambda)$ 是波长 λ 处的权重因子。以 Merit 最小值作为目标函数,设置光学薄膜参数的取值范围作为约束条件,构建优化问题的物理模型。然后选择合适的优化算法求解物理模型,得到的物理模型参数即为膜系各膜层的光学薄膜参数,最后将该计算结果作为实际膜系各膜层的光学薄膜参数。常用的优化算法包括:单纯形法、Powell 法、非线性最小二乘法、遗传算法、模拟退火算法等。单纯形法、Powell 法、非线性最小二乘法都属于局部优化算法^[8],该类算法可快速搜索得到局部最优解,计算效率高,但准确性低、稳定性差。遗传算法、模拟退火算法属于全局优化算法^[9-10],该类算法可在较大参数取值范围内搜索目标函数的全局最优解,计算的准确性高,但计算效率低、稳定性也差。因此,修正物理模型、改进优化算法可以提高该方法的求解效率和准确性。

2 包络线-全光谱拟合反演法

2.1 理论基础

光波垂直入射条件下,依据光学薄膜矩阵传输理论,具有 K 层膜的薄膜系统的特征矩阵为:

$$\begin{bmatrix} B \\ C \end{bmatrix} \left\{ \prod_{j=1}^K \begin{pmatrix} c_{1j}+ic_{2j} & [i(s_{1j}n_j-s_{2j}k_j)-(s_{1j}k_j+s_{2j}n_j)]/(n_j^2+k_j^2) \\ (s_{1j}k_j-s_{2j}n_j)-i(s_{1j}n_j+s_{2j}k_j) & c_{1j}+ic_{2j} \end{pmatrix} \right\} \begin{pmatrix} 1 \\ \eta_s \end{pmatrix} \quad (5)$$

式中： $c_{1j}=\cos\delta_{1j}\text{ch}\delta_{2j}$ ， $c_{2j}=\sin\delta_{1j}\text{sh}\delta_{2j}$ ， $s_{1j}=\sin\delta_{1j}\text{ch}\delta_{2j}$ ， $s_{2j}=-\cos\delta_{1j}\text{sh}\delta_{2j}$ ，其中， $\delta_{1j}=2\pi n_j d_j/\lambda$ ， $\delta_{2j}=2\pi k_j d_j/\lambda$ 。整个薄膜系统的透射率为：

$$T=4n_0 n_s / (n_0 B + C)(n_0 B + C)^* \quad (6)$$

由公式(6)可见，透射率 T 是薄膜系统各膜层光学薄膜参数 n, k, d 的多元函数。

2.2 包络线-全光谱拟合反演法物理模型建立

首先在特定工艺条件下制备膜系膜层材料的单层膜，利用包络线法测量该单层膜的光学薄膜参数。将公式(1)、(2)的计算结果作为求解膜系各膜层折射率和消光系数的初始值，将该工艺条件下制备膜系时各膜层的监控厚度作为求解膜系各膜层厚度的初始值。其次将膜系的使用波长范围 $\lambda_{\min}\sim\lambda_{\max}$ 分割为 N 个区间，利用全光谱拟合反演法求解第 i 个小区间上膜系各膜层的光学薄膜参数，求解的物理模型如下：

$$\min \text{Merit}(i) = \int_{\lambda_{\min}}^{\lambda_{\max}} \omega(\lambda) [T(\lambda) - \tilde{T}(\lambda)] d\lambda \quad (7)$$

$$\text{s.t.} \begin{cases} n_{lbi} \leq n_i \leq n_{ubi} \\ k_{lbi} \leq k_i \leq k_{ubi} \\ d_{lbi} \leq d_i \leq d_{ubi} \end{cases} \quad (8)$$

其中，公式(7)为目标函数，公式(8)为约束条件。再次选用非线性最小二乘法与改进遗传算法相结合的综

合优化算法，依据膜系各膜层的光学薄膜参数的初始值设定第 i 个小区间上优化算法的搜索范围，求解该物理模型，获得第 i 个小区间的膜系各膜层的光学薄膜参数。最后依次求解剩余 $N-1$ 个区间膜系各膜层的光学薄膜参数，可得到膜系在整个使用波长范围内各膜层的光学薄膜参数。

3 数值模拟验证与结果分析

3.1 单层膜光学薄膜参数的测量及结果分析

以设计的 TiO_2 和 SiO_2 单层膜光谱作为测量对象，基底为 K9 玻璃。在 400~1200 nm 波长范围内，分别采用包络线法和包络线-全光谱拟合反演法测量单层膜的光学薄膜参数。表 1 是设计厚度为 500 nm 的 TiO_2 和 SiO_2 单层膜光学薄膜参数的测量结果，表中 t 是测量时间、 d 是厚度、 n 是折射率、 k 是消光系数；以设计值为参考， δ_d 是厚度测量结果的绝对误差， $\tilde{\delta}_n$ 、 $\tilde{\delta}_k$ 分别是折射率和消光系数的测量结果最大绝对误差， \bar{d} 、 δ_d 分别是 5 次测量得到的厚度平均值和绝对误差。

400~1200 nm 测量波长范围内， SiO_2 色散很小，折射率近似为 1.46，消光系数近似为 0，测量过程可

表 1 不同方法测量设计厚度为 500 nm TiO_2 、 SiO_2 单层膜的光学薄膜参数

Tab.1 Measuring thin film optical parameters of the 500 nm TiO_2 and SiO_2 sample in different ways

Number	TiO_2								SiO_2							
	Envelope method				Envelope-full spectral fitting inversion method				Envelope method				Envelope-full spectral fitting inversion method			
	t/s	d/mm	$\tilde{\delta}_n \times 10^{-1}$	$\tilde{\delta}_k \times 10^{-3}$	t/s	d/mm	$\tilde{\delta}_n \times 10^{-1}$	$\tilde{\delta}_k \times 10^{-3}$	t/s	d/mm	n	$k \times 10^{-3}$	t/s	d/mm	n	$k \times 10^{-3}$
1	20	507.38	0.32	0.38	42	500.84	0.15	0.12	20	508.73	1.50	0.02	35	499.33	1.46	0
2	15	506.62	0.29	0.30	38	500.68	0.12	0.20	15	508.87	1.48	0	60	502.18	1.47	0
3	16	506.80	0.31	0.42	39	501.39	0.09	0.23	16	506.65	1.46	0	30	498.76	1.45	0
4	13	507.69	0.40	0.37	45	498.89	0.20	0.10	13	508.408	1.50	0.01	55	500.84	1.46	0
5	10	508.33	0.55	0.22	60	499.01	0.18	0.21	10	510.25	1.51	0.05	48	501.25	1.44	0
		$\bar{d}=507.36$	$\delta_d=7.36$			$\bar{d}=500.16$	$\delta_d=0.16$			$\bar{d}=508.60$	$\delta_d=8.60$			$\bar{d}=500.47$	$\delta_d=0.47$	

将折射率和消光系数看作常数进行计算。由表 1 可见,包络线法和包络线-全光谱拟合反演法测量的折射率分别为 1.49、1.46,绝对误差分别为 0.03、0。400~1200 nm 测量波长范围内, TiO₂ 色散较大,测量结果应该是折射率和消光系数是随波长变化关系,如图 1、图 2 给出第 1 次测量得到的折射率和消光系数变化曲线。

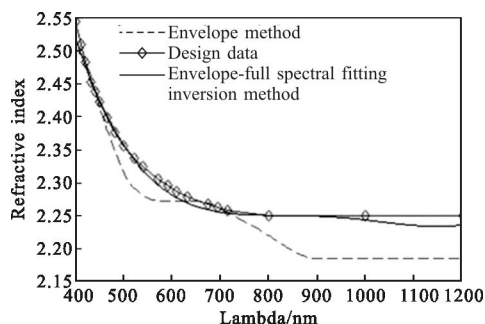


图 1 折射率随波长的变化关系

Fig.1 Refractive index changing depend wavelength

由图 1、图 2 及表 1 测量结果可见,包络线法测量的折射率和消光系数的最大绝对误差和厚度的绝对误差都明显大于包络线-全光谱拟合反演法,测量时间小于包络线-全光谱拟合反演法。因此,两种方法相比,包络线-全光谱拟合反演法测量的准确性

高,稳定性好,测量效率较低。

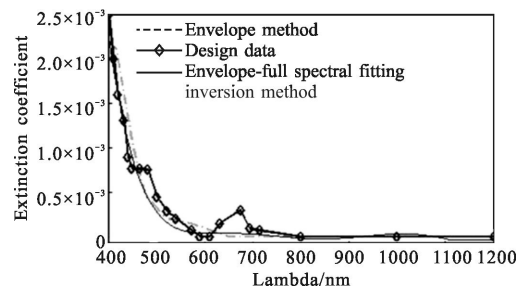


图 2 消光系数随波长的变化关系

Fig.2 Extinction coefficient changing depend wavelength

3.2 膜系各膜层光学薄膜参数的测量及结果分析

选择常用的镀膜材料,高折射率选 TiO₂,低折射率选 SiO₂。以初始膜系为:G|0.5HLHL0.5H|A(H-TiO₂, L-SiO₂,G 表示基底为 K9 玻璃,A 表示入射介质为空气)的五层膜光谱作为测量对象。在 400~1200 nm 波长范围内,分别采用全光谱拟合反演法和包络线-全光谱拟合反演法测量膜系各膜层的光学薄膜参数。包络线-全光谱拟合反演法测量时,优化模型的约束条件为: $0.8n_0 \leq n \leq 1.2n_0, 0.7k_0 \leq k \leq 1.3k_0, 0.9d_0 \leq d \leq 1.1d_0$,其中 n_0, k_0, d_0 为膜系各膜层光学薄膜参数的初始值。表 2 和表 3 给出 450 nm、550 nm、700 nm、900 nm 4 个选定波长位置膜系各膜层光学

表 2 全光谱拟合反演法测量 G|0.5HLHL0.5H|A 膜系的光学薄膜参数

Tab.2 Measuring thin film optical parameters of G|0.5HLHL0.5H|A sample with full spectral fitting inversion method used

Wavelength/nm	450			550			700			900		
	<i>n</i>	<i>k</i> ×10 ⁻³	<i>d</i> /mm	<i>n</i>	<i>k</i> ×10 ⁻³	<i>d</i> /mm	<i>n</i>	<i>k</i> ×10 ⁻³	<i>d</i> /mm	<i>n</i>	<i>k</i> ×10 ⁻³	<i>d</i> /mm
Optical thin film parameters												
Layer1 TiO ₂	2.48	1.50	24.55	2.40	0.66	24.25	2.25	0.21	24.74	2.20	0.08	27.88
Layer2 SiO ₂	1.47	0	80.97	1.42	0	85.86	1.49	0	84.58	1.48	0	80.65
Layer3 TiO ₂	2.46	1.22	57.28	2.35	0.23	56.55	2.22	0.25	54.70	2.20	0.1	54.42
Layer4 SiO ₂	1.48	0	86.01	1.46	0	83.10	1.47	0	82.70	1.46	0	83.38
Layer5 TiO ₂	2.45	1.37	24.76	2.38	0.35	25.07	2.23	0.38	24.15	2.21	0.06	22.07

表 3 包络线-全光谱拟合反演法不同方法测量 G|0.5HLHL0.5H|A 膜系的光学薄膜参数

Tab.3 Measuring thin film optical parameters of G|0.5HLHL0.5H|A sample with envelope-full spectral fitting inversion method used

Wavelength/nm	450			550			700			900		
	<i>n</i>	<i>k</i> ×10 ⁻³	<i>d</i> /mm	<i>n</i>	<i>k</i> ×10 ⁻³	<i>d</i> /mm	<i>n</i>	<i>k</i> ×10 ⁻³	<i>d</i> /mm	<i>n</i>	<i>k</i> ×10 ⁻³	<i>d</i> /mm
Optical thin film parameters												
Layer1 TiO ₂	2.43	1.21	27.01	2.37	0.45	26.65	2.26	0.22	26.66	2.22	0	26.64
Layer2 SiO ₂	1.46	0	86.39	1.45	0	88.19	1.45	0	87.94	1.46	0	87.38
Layer3 TiO ₂	2.45	1.25	54.55	2.35	0.55	54.79	2.25	0.18	54.80	2.24	0	53.78
Layer4 SiO ₂	1.44	0	86.28	1.46	0	87.13	1.47	0	87.39	1.46	0	86.44
Layer5 TiO ₂	2.42	1.17	26.76	2.34	0.36	26.63	2.27	0.13	27.58	2.25	0	26.63

薄膜参数的测量结果。

与初始膜系 $G10.5HLHL0.5H1A$ 对应的各膜层物理厚度为: $G1|27.14, 87.22, 54.29, 87.22, 27.14|A$ 。由表 2 和表 3 计算各膜层物理厚度的平均值, 作为各膜层物理厚度最终的测量结果, 因此全光谱拟合反演法测量的各膜层物理厚度为: $G1|25.35, 83.01, 55.74, 83.79, 24.01|A$, 包络线-全光谱拟合反演法测量的各膜层物理厚度为: $G1|26.74, 87.47, 54.48, 86.81, 26.90|A$ 。分别利用测量的光学薄膜参数计算膜系的透射光谱, 并与设计光谱进行比较, 如图 3 所示。

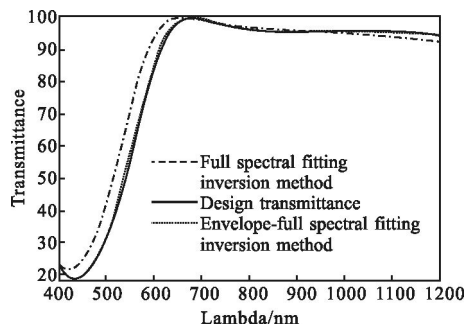


图 3 不同方法测量的膜系光谱图

Fig.3 Measuring spectra of films in different methods

由图 3 可见, 包络线-全光谱拟合反演法得到的透射光谱与设计光谱基本重合, 全光谱拟合反演法得到的透射光谱误差较大, 因此包络线-全光谱拟合反演法测量的准确性更高。通过多次测量发现, 包络线-全光谱拟合反演法测量时间都在 60~90 s 之间, 全光谱拟合反演法测量时间都在 300~500 s 之间。另外, 不同的测量次数, 全光谱拟合反演法得到的光学薄膜参数测量结果变化较大, 测量稳定性差。总之, 与全光谱拟合反演法相比, 包络线-全光谱拟合反演法测量的效率和准确性更高, 测量稳定性也更好。

4 结论

通过分析包络线法和全光谱拟合反演法两种测量方法的准确性、稳定性、测量效率等特点, 基于光学薄膜相关理论, 结合两种测量方法的优点, 提出了新的光学薄膜参数测量方法——包络线-全光谱拟合反演法, 并给出了该方法的物理模型、评价函数、优化算法等。选用常用的 TiO_2 和 SiO_2 薄膜材料, 设计单层膜和多层膜系进行了测量验证, 结果表明, 相对于包络线法, 包络线-全光谱拟合反演法测量效率

较低, 但测量准确性更高, 测量稳定性也更好; 相对于全光谱拟合反演法, 包络线-全光谱拟合反演法测量准确性更高, 测量效率更高, 测量稳定性也更好。因此, 包络线-全光谱拟合反演法在进行膜层光学薄膜参数快速准确测量的更有效方法。

参考文献:

- [1] Ulrich R, Torge R. Measurement of thin film parameters with a prism coupler [J]. *Applied Optics*, 1973, 12 (12): 2901-2980.
- [2] Bhattacharyya D, Sahoo N K, Thakur S, et al. Spectroscopic ellipsometry of TiO_2 layers prepared by ion-assisted electron-beam evaporation [J]. *Thin Solid Films* (S0040-6090), 2000, 360(1/2): 96-102.
- [3] Ji Yiqin, Liu Huasong, Zhang Yanmin. Test and analysis of optical film constants [J]. *Infrared and Laser Engineering*, 2006, 35(5): 513-518. (in Chinese)
- [4] Chen Yanping, Yu Feihong. Test methods for film thickness and optical constants [J]. *Optical Instruments*, 2006, 28(6): 84-88. (in Chinese)
- [5] Xie Yi, Chen Qian, Liu Yong. Determination of the optical constants and thickness of thin film by improved flexible tolerance method [J]. *Infrared and Laser Engineering*, 2007, 36(4): 521-525. (in Chinese)
- [6] Dirk Perlman, Philippe Frederic Smet. Methods for the determination of the optical constants of thin films from single transmission measurements: a critical review [J]. *Appl Phys*, 2003, 3(6): 1850-1857.
- [7] Yao Xilin, Tong Nanchun, Xiong Changxin. New methods for determining optical constants of thin films from single measurements [J]. *Optical Design and Testing II*, 2005, 5638 (140): 1088-1099. (in Chinese)
- [8] Zhou Tianyu, Yang Kaiyong, Wu Suyong. Determination of optical constants and thicknesses of high-reflection multilayer system [J]. *Journal of Applied Optics*, 2011, 32(1): 128-132. (in Chinese)
- [9] Wu Xianquan, Hua Wenshen, Xie Dabin, et al. Inversions of thickness and optical constants of thin film based on improved genetic algorithm [J]. *Optical Instruments*, 2010, 32(3): 86-90. (in Chinese)
- [10] Jing Longkang, Jiang Yurong, Ni Ting. Application of adaptive simulated annealing genetic algorithm in inverse of optical constants and thickness of the thin film [J]. *Optical Technique*, 2012, 38(2): 218-222. (in Chinese)