

一种基于自适应差分进化算法的薄膜参数表征方法研究 (特邀)

管钰晴^{1,2}, 傅云霞^{1,2}, 邹文哲^{1,2}, 谢张宁³, 雷李华^{1,2*}

1. 上海市计量测试技术研究院, 上海 201203;
2. 上海市在线检测与控制技术重点实验室, 上海 2012032;
3. 同济大学物理科学与工程学院, 上海 200082)

摘要: 依据穆勒椭偏测量方法中偏振光的传输方式, 文中提出了一种基于自适应差分进化算法 (SADE) 的各向同性纳米薄膜厚度与光学常数的表征方法。通过建立出射光强关于待测标准样片穆勒矩阵的最小二乘模型, 用 SADE 算法对穆勒矩阵元素进行求解, 并将拟合得到的穆勒光谱曲线与用双旋转补偿器穆勒矩阵椭偏仪 (DRC-MME) 测量得到的穆勒光谱图进行了比较, 利用传输矩阵求解薄膜厚度。对标定值分别为 (104.2 ± 0.4) nm 和 (398.4 ± 0.4) nm 的 SiO_2/Si 标准样片进行仿真计算, 实验表明: 当分别迭代到 80 次和 87 次时, 目标函数光强的残差平方和收敛到最小值 0.97 和 1.01, 得到的膜厚计算值分别是 (103.8 ± 0.6) nm 和 (397.8 ± 0.6) nm, 相对误差均小于 1%。同时用计量型椭偏仪根据得到的折射率进行计算, 得到膜厚的计算值分别为 (104.1 ± 0.6) nm 和 (398.2 ± 0.6) nm, 验证了 SADE 在相近收敛速度下对各向同性纳米薄膜参数求解过程中具有计算简单和可以准确的找到全局最优解的特点。

关键词: 穆勒矩阵; 椭偏测量; 自适应差分进化算法; 适应度; 标准样片

中图分类号: TH74 **文献标志码:** A **DOI:** 10.3788/IRLA20210976

A characterization method of thin film parameters based on adaptive differential evolution algorithm (*Invited*)

Guan Yuqing^{1,2}, Fu Yunxia^{1,2}, Zou Wenzhe^{1,2}, Xie Zhangning³, Lei Lihua^{1,2*}

1. Shanghai Institute of Measurement and Testing Technology, Shanghai 201203, China;
2. Shanghai Key Laboratory of Online Test and Control Technology, Shanghai 2012032, China;
3. School of Physical Science and Engineering, Tongji University, Shanghai 200082, China)

Abstract: According to the transmission mode of polarized light in Mueller ellipsometry, a characterization method for the thickness and optical constants of isotropic nano films based on Self-Adaptive Differential Evolution algorithm (SADE) was proposed. By establishing the least square model of the output light intensity with respect to the Mueller matrix of the standard sample to be measured, the elements of the Mueller matrix were solved by using the Sade algorithm, and the Mueller spectral curve obtained by fitting was compared with that measured by dual rotating-compensator Mueller matrix ellipsometer (DRC-MME), and the film thickness was calculated by using the transfer matrix. The SiO_2/Si standard samples with calibration values of (104.2 ± 0.4) nm and (398.4 ± 0.4) nm were simulated and calculated. The experiment shows that: when numbers of iterations accumulated to 80 and 87 respectively, the residual square sum of the light intensity of the objective function

收稿日期: 2021-12-17; 修订日期: 2022-01-10

基金项目: 国家重点研发计划项目 (SQ2019 YFB20002503); 上海科技自然科学基金项目 (21 ZR1483100); 上海市学术/技术带头人项目 (21 XD1425000)

作者简介: 管钰晴, 女, 硕士生, 主要从事微纳米几何测量技术方面的研究。

通讯作者: 雷李华, 男, 高级工程师, 博士, 主要从事微纳米几何测量技术方面的研究。

converges to the minimum values of 0.97 and 1.01. The calculated film thickness values are (103.8 ± 0.6) nm and (397.8 ± 0.6) nm respectively, and the relative errors are both less than 1%. At the same time, a metrological ellipsometer was used to calculate according to the obtained refractive index, and the calculated values of the film thickness were 104.1 nm and 398.2 nm. It is verified that SADE has the characteristics of simple calculation and accurate global optimal solution in solving the parameters of isotropic nano films at a similar convergence rate.

Key words: Mueller matrix; ellipsometry measurement; self-adaptive differential evolution algorithm; fitness; standard sample

0 引言

随着纳米计量技术的发展,微纳米薄膜因其优异的化学性能具有广泛的应用。除了微电子领域,在飞机表面的隐身涂层、航空发动机尾喷管的涂层等均为纳米薄膜。这类薄膜通常是由单晶硅、多晶硅、氧化硅、氮化硅以及一些金属材料,通过化学气相沉积、溅射、电镀等方法形成的,再通过光刻、蚀刻、牺牲层腐蚀、体硅腐蚀等形成各种形状,应用于不同的部位。与传统的涂层相比具有更高的硬度、抗氧化性和耐腐蚀性,大幅度提高了涂层材料的性能、使用年限等。对于纳米级结构的材料,其性能受光学常数、几何尺寸、形貌结构影响,任意参数的微小改变都会使其性能有很大不同。其中光学常数和薄膜厚度起主导作用,因此对薄膜光学常数和厚度的精密测量至关重要^[1-3]。

在扫描电子显微镜 (SEM) 和原子力显微镜 (AFM) 等扫描探针显微技术是目前纳米结构几何测量的主要手段,作为传统的测量方法虽然可以满足测量要求,但也存在测量速度慢、操作复杂的问题,无法实现工艺制造上的实时测量^[3]。穆勒椭偏仪是一种基于模型的的光学精密测量仪,利用样品的穆勒矩阵反演得到参数信息。该方法具有速度快、成本低、非破坏且操作简单的优点,可以实现薄膜的在线检测。通常情况下,当测量样本较多的情况下,在建模计算中,与薄膜参数有关的求解方程组为超定方程组,需要在多个求解值范围内找到最佳值,此时对方程组的严格求解已不适用^[4]。

基于以上分析文中提出了一种基于自适应差分进化智能算法 (SADE) 的薄膜厚度与光学参数表征方法。根据光束在穆勒椭偏系统中的传输方式,建立光强值的最小二乘模型,用 SADE 算法对样品的穆勒矩阵元素进行拟合,同时结合各向同性样品的传输矩

阵,可以快速地找到最大程度满足所有方程组的薄膜参数,从而实现薄膜参数的表征。

1 椭偏仪测量原理

椭偏仪是凭借测量经过样品散射后光束偏振态的变化,通过建模和计算,反演出被测样品的膜厚和光学特性。测量过程主要有两步:一是通过正向光学建模,构建样品膜层、膜厚等几何参数以及光源入射角、偏振器方位角之间的理论光强矩阵;二是通过搭建的穆勒椭偏系统测量样品的实际光强矩阵,并与模型计算的理论光矩阵匹配,满足精度的情况下提取参数。光束在椭偏仪中的光路如图 1 所示^[5-6]。

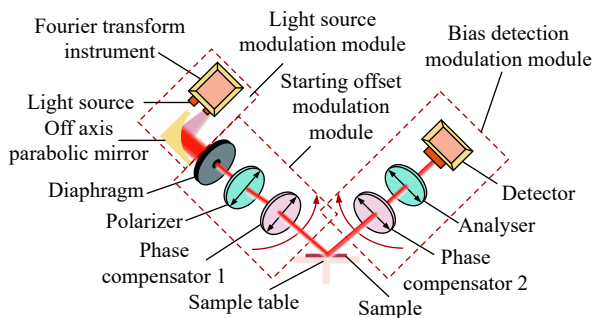


图 1 系统搭建光路图

Fig.1 Optical path diagram of system construction

穆勒椭偏仪主要由光源、起偏器、波片、检偏器和光谱探测器组成。从光源出射的光束经过准直系统形成平行光,垂直入射到由起偏器 P 和补偿器 C₁ 组成的起偏系统 (PSG) 中,将平行光调制成偏振光;偏振光再汇聚到样品表面,经样品 L 反射后进入检偏系统 (PSA) 中,PSA 由补偿器 C₂ 和检偏器 A 组成;经由 PSA 系统解调后,出射的平行光进入光谱仪分光并通过探测器测得出射光强^[7]。

光的偏振态由斯托克斯矢量描述,出射光和入射光偏振态的变化可以用如下公式表示:

$$S_{out} = M_A R(A_S) \cdot [R(-C_{S2}) M_{C2}(\delta_2) R(C_{S2})] \cdot M_L \cdot [R(-C_{S1}) M_{C1}(\delta_1) R(C_{S1})] \cdot R(-P_S) M_P \cdot S_{in} \quad (1)$$

式中: S_{in} 和 S_{out} 分别为进入起偏系统前和经过检偏系统后光束的斯托克斯矢量; A_S 和 P_S 为检偏器和起偏器的透光轴方位角; C_{S1} 和 C_{S2} 分别对应补偿器 C_1 和补偿器 C_2 的初始快轴方位角; δ_1 和 δ_2 分别为补偿器 C_1 和补偿器 C_2 的相位延迟; M_A 、 M_P 、 M_{C2} 、 M_{C1} 和 M_L 分别为检偏器、起偏器、补偿器 C_2 、补偿器 C_1 和待测样品的穆勒矩阵; $R(\theta)$ 为元件相对入射面旋转 θ 时的 Mueller 矩阵。在不考虑偏振片旋光度、漏光和应

力双折射的理想情况下:

$$R(-P_S) M_P = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} 1 & \cos 2P_S & \sin 2P_S & 0 \\ \cos 2P_S & \cos^2 2P_S & \sin 2P_S \cos 2P_S & 0 \\ \sin 2P_S & \sin 2P_S \cos 2P_S & \sin^2 2P_S & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \quad (2)$$

$$M_A R(A_S) = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} 1 & \cos 2A_S & \sin 2A_S & 0 \\ \cos 2A_S & \cos^2 2A_S & \sin 2A_S \cos 2A_S & 0 \\ \sin 2A_S & \sin 2A_S \cos 2A_S & \sin^2 2A_S & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \quad (3)$$

$$M_1 = \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 1 - (1 - \cos \Delta_1) \sin^2 2C_{S1} & (1 - \cos \Delta_1) \sin 2C_{S1} \cos 2C_{S1} & -\sin \Delta_1 \sin 2C_{S1} \\ 0 & (1 - \cos \Delta_1) \sin 2C_{S1} \cos 2C_{S1} & 1 - (1 - \cos \Delta_1) \cos^2 2C_{S1} & \cos \Delta_1 \cos 2C_{S1} \\ 0 & \sin \Delta_1 \sin 2C_{S1} & -\sin \Delta_1 \cos 2C_{S1} & \cos \Delta_1 \end{pmatrix} \quad (4)$$

$$M_2 = \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 1 - (1 - \cos \Delta_2) \sin^2 2C_{S2} & (1 - \cos \Delta_2) \sin 2C_{S2} \cos 2C_{S2} & -\sin \Delta_2 \sin 2C_{S2} \\ 0 & (1 - \cos \Delta_2) \sin 2C_{S2} \cos 2C_{S2} & 1 - (1 - \cos \Delta_2) \cos^2 2C_{S2} & \cos \Delta_2 \cos 2C_{S2} \\ 0 & \sin \Delta_2 \sin 2C_{S2} & -\sin \Delta_2 \cos 2C_{S2} & \cos \Delta_2 \end{pmatrix} \quad (5)$$

式中: M_1 和 M_2 分别为两个波片对光束进行调制的穆勒矩阵。文中实验采用的是双旋转补偿器型穆勒椭圆偏测量系统, 该系统为连续旋转的偏振系统, 补偿器 C_1 和补偿器 C_2 分别以 1:5 是角速度同步旋转。步进电机以固定步长带动波片 C_1 旋转, 每个位置为一个偏振调制态, 一个周期内产生 m 个偏振态, 每个起偏调制位置对应 n 个检偏调制态, 则一个光学周期内测量光强数为 $m \times n$ 。要获得样品穆勒矩阵的 16 个元素, 则至少需要测量 16 组光强数据, 需满足 $m \times n \geq 16$ 。

$$I_{n \times m} = W_{n \times 4} M_L G_{4 \times m} = \begin{bmatrix} W_1 \\ W_2 \\ \vdots \\ W_n \end{bmatrix} \begin{bmatrix} m_{11} & m_{12} & m_{13} & m_{14} \\ m_{21} & m_{22} & m_{23} & m_{24} \\ m_{31} & m_{32} & m_{33} & m_{34} \\ m_{41} & m_{42} & m_{43} & m_{44} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} G_1 & G_2 & \cdots & G_m \end{bmatrix} \quad (7)$$

斯托克斯矢量的第一个元素代表光强值, 假设每个起偏系统对应的偏振态为 G , 检偏系统对应的偏振态为 W 。入射光的斯托克斯矢量为 $S_{in} = (1, 0, 0, 0)^T$, 出射光强只与检偏调制模块的第一列元素 G_i 和起偏调制模块的第一行元素 W_j 有关, 则 t 时刻光强探测器上的出射光强 $I(t)$ 为:

$I_{m \times n}$ 为所有偏振态的光强矩阵, 对公式 (7) 进行向量化算子运算, 将光强矩阵 $I_{m \times n}$ 按列展开成 $m \times n$ 行的列向量, 将 M_L 按列展开成 $4 \times 4 = 16$ 行列向量:

$$I(t) = W_1 M_L G_1 \quad (6)$$

$$\begin{bmatrix} I_{11} \\ I_{21} \\ \vdots \\ I_{n1} \\ I_{12} \\ \vdots \\ I_{nm} \end{bmatrix} = (G^T \otimes W) Vec(M_L) = \begin{bmatrix} g_{11} W & g_{21} W & g_{31} W & g_{41} W \\ g_{12} W & g_{22} W & g_{32} W & g_{42} W \\ \vdots & \vdots & \vdots & \vdots \\ g_{1m} W & g_{2m} W & g_{3m} W & g_{4m} W \end{bmatrix} \begin{bmatrix} m_{11} \\ m_{21} \\ m_{31} \\ m_{41} \\ m_{12} \\ \vdots \\ m_{44} \end{bmatrix} \quad (8)$$

采集 $m \times n$ 组光强后, 构建光强矩阵与起偏调制矩阵、检偏调制矩阵和样品穆勒矩阵之间的理论关系式:

式中: 16 阶矩阵 $G^T \otimes W$ 为起偏系统矩阵 G 的转置与检偏系统矩阵 W 的克罗内克 (Kronecker) 积, 若要求

出完整的穆勒矩阵,至少需要采集 16 组光强数据。若 $n=m=4$,可以对公式 (8) 中的 16 个方程进行严格求解得到样品的穆勒矩阵;通常情况下为了提高测量准确度,减少随机误差,测量光强值会大于 16 组,此时公式 (8) 无法进行严格求解,需要引入最小二乘法进行拟合,为了减小拟合误差,考虑到参数的多样性和相关性,于是引入自适应差分进化智能算法求解方程组。

2 自适应差分进化算法

理想情况下模型求出的光强与实际测量的归一化后光强应相等,但由于误差的存在,使得理论光强与实测光强间存在一定的残差,对样品穆勒矩阵的求解即使模型的总残差和最小,本质上是一个全局最优化问题。采用最小二乘法进行拟合,待拟合参数为穆勒矩阵的 16 个矩阵元,目标函数为所有样本计算光强值与测量光强值的残差平方和:

$$\chi^2 = \phi(u_j) = \min \left[\sum_{i=1}^{mn} (I_{ti} - I_{outi})^2 \right] = \min f \quad (9)$$

式中: $m \times n$ 为采集的光强个数; j 为待优化参数的维度。根据最小二乘法的拟合误差最小原则,可以通过优化算法对目标函数求解,得到具有最小残差平方和的参数。传统的优化算法主要有牛顿法、高斯牛顿法和梯度下降法等,对于复杂结构的优化问题具有一定的局限性^[8-10]。

差分进化算法是 1997 年由 Rainer Storn 和 Kenneth Price 在遗传算法的进化思想上提出的一种自适应智能算法,具有较好可靠性、高效性和鲁棒性,可以在解空间内进行连续、并行的搜索,同时被证明了是最快的进化算法之一^[11-12]。公式 (8) 为超定方程组,严格求解难以确定穆勒元素值,可以在确定的初始解空间内用 SADE 算法进行拟合。差分进化算法是一种多目标的优化算法,采用实数编码、基于差分的变异与竞争生存的策略,与遗传算法相同包括变异、交叉和选择三个步骤^[13-15]。差分进化算法是在初始种群中随机抽取父代个体进行变异,并与之进行交叉形成新的向量个体,最后采用贪婪策略在父代个体向量与新的向量个体中选择更优结果作为子代个体。为了加快收敛速度,提高算法的准确度,在差分进化算法基础上提出了自适应差分进化算法 (SADE),流程如图 2 所示。

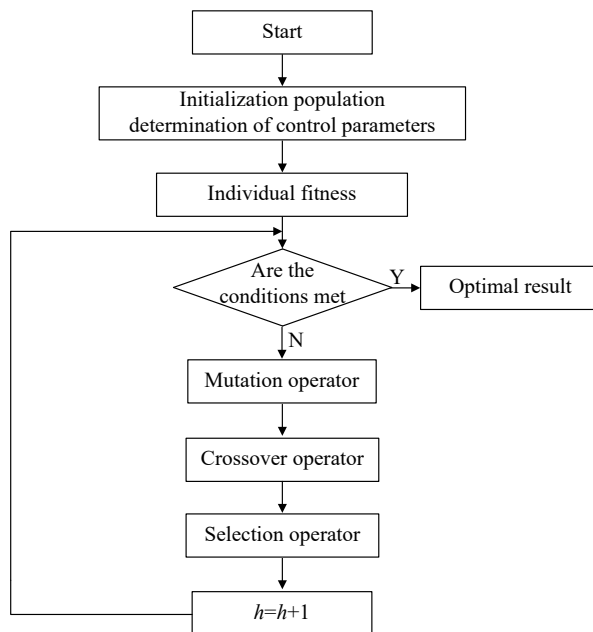


图 2 自适应差分进化算法流程图

Fig.2 Flow chart of adaptive differential evolution algorithm

2.1 种群初始化

根据待拟合参数确定初始解个体数 NP , 给出每个参数的可能解的数量 D , 初始解集 G 中的个体表示为:

$$x_i^k = [x_{i,1}^k, x_{i,2}^k, x_{i,3}^k, \dots, x_{i,D}^k], i = 1, 2, \dots, NP \quad (10)$$

式中: x_i^k 表示第 k 次迭代的个体, 用 0 表示参数的初代种群, 在解空间中每个个体随机产生一组初始向量作为父代个体, 即为初始解:

$$x_i^0 = L_{\min} + rand_i(0, 1)(L_{\max} - L_{\min}) \quad (11)$$

差分进化算法的解空间会有给定的约束边界条件, L_{\max} 和 L_{\min} 分别表示每个待求解参数解空间的上限和下限。

2.2 变异算子

将初始解集进行换算可以得到新的解集, 差分进化算法是基于初始解之间的差分矢量对个体每个变量进行变异操作的, 对于进行了 k 次迭代的每个参量个体 x_i^k , 随机选取除 x_i 外的三个不相同的个体 $x_{r_1}^k$, $x_{r_2}^k$ 和 $x_{r_3}^k$, 对两个矢量间的差分矢量赋予权重, 然后加到第三个个体, 通过变异得到变异算子 v_i^k , 采用的变异策略为:

$$v_i^k = x_{r_1}^k + F \cdot (x_{r_2}^k - x_{r_3}^k) \quad (12)$$

式中: $\Delta_{r_2, r_3} = x_{r_2}^k - x_{r_3}^k$ 为差分矢量, 通过给定的缩放因子 F 可以控制差分矢量 Δ_{r_2, r_3} 在变异过程中对所求目标

解的影响。一般情况下 F 介于 0 和 2 之间,通常取 0.5。但为了保证能在最优个体上进行变异,提高变异的优越性,文中实验采用可自适应调整的缩放因子 F 。假设三个随机选择的变异算子从优到劣的排列顺序为 $x_{r_1}^k$ 、 $x_{r_2}^k$ 和 $x_{r_3}^k$, 对应的适应度分别为 f_{r_1} 、 f_{r_2} 和 f_{r_3} , 则 F 的取值根据差分向量对应两个个体的自适应度调整:

$$F_i = F_l + (F_u - F_l) \frac{f_{r_2} - f_{r_1}}{f_{r_3} - f_{r_1}} \quad (13)$$

式中: F_l 为 0.1; F_u 为 0.9。

2.3 交叉算子

为了增加种群的多样性,引入交叉算子。在第 k 迭代时,将每个父代个体与其对应生成的变异向量进行交叉操作,与遗传算法不同的是,差分进化算法的交叉对象为每次迭代过后的可能解集。按照一定的概率选择中间变个体或父代个体作为子代个体,即:

$$h_{i,j}^k = \begin{cases} v_{i,j}^k, rand(0,1) \leq P_{cr} \\ x_{i,j}^k, else \end{cases} \quad (14)$$

式中: $rand(0,1)$ 为随机选择的数; P_{cr} 为自适应交叉概率作为控制子代个体选择的阈值,介于 0 到 1 之间。若 P_{cr} 较大,父代个体作为子代继续进行的可能性较大,则可以加快函数的收敛速度;若 P_{cr} 较小,则变异算子 $v_{i,j}^k$ 作为子代的可能性增大,从而可以提升物种的多样性。然而较大或较小的单一 P_{cr} 都不利于函数的迭代,良好的交叉概率应该要适应变异后的个体,调整到适合下一代变异的大小,这样不仅可以提高收敛速度,同时也能跳出局部最优找到全局最优解。采用的自适应策略如公式 (15) 所示:

$$P_{cr_i} = \begin{cases} P_{cr_i} + (P_{cr_u} - P_{cr_i}) \frac{f_i - f_{\min}}{f_{\max} - f_{\min}}, f_i \geq \bar{f} \\ P_{cr_i}, f_i < \bar{f} \end{cases} \quad (15)$$

式中: f_i 为 x_i 的个体适应度; \bar{f} 为当前种群的平均适应度; f_{\min} 和 f_{\max} 分别为种群中最差个体和最优个体的适应度; P_{cr_l} 和 P_{cr_u} 分别为种群自适应概率的下限和上限,通常取 0.1 和 0.6。

2.4 选择算子

差分进化算法按照贪婪算法的准则,对于每一代个体的值,比较目标值与交叉得到的个体值,根据自适应函数 f ,依据公式 (16) 选择更优的个体作为子代个体进入下一次迭代:

$$x_i^{k+1} = \begin{cases} h_i^k, f(h_i^k) < f(x_i^k) \\ x_i^k, else \end{cases} \quad (16)$$

按照如上式选择的个体一定优于父代个体,且最终会收敛到某个最优解。

3 实验及数据分析

3.1 数据的采集与预处理

用 SADE 算法测量标准样品的光学常数和膜厚,在仿真计算之前需要将薄膜等效化为理想结构模型。根据样品薄膜和基底的光学特性,用传输矩阵法建立与光学常数、样品厚度和入射角相关的 4×4 阶的穆勒矩阵。对于各向同性的纳米薄膜,用椭圆参数偏振角 (ψ) 和相位差 (Δ) 表示,理想情况下其穆勒矩阵为:

$$M_L = \begin{bmatrix} 1 & -\cos 2\psi & 0 & 0 \\ -\cos 2\psi & 1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & \sin 2\psi \cos \Delta & \sin 2\psi \sin \Delta \\ 0 & 0 & -\sin 2\psi \sin \Delta & \sin 2\psi \cos \Delta \end{bmatrix} \quad (17)$$

3.2 仿真计算

基于 2、3 节的公式,对 SADE 表征法进行模拟计算。在波长 500~900 nm 范围内,光源的入射角为 65° 条件下,在一个光学周期 (π) 内对标称厚度值为 90.0 nm 和 398.4 nm 的 SiO_2/Si 标准样片进行定点测量。步进电机的步距角为 1.8° ,两个同步连续旋转的波片以初始点为时间起点,以 400 ran/min 和 80 ran/min 的旋转角速度旋转,分别间隔固定的步长 n_1 和 n_2 测量出射光强信息,采集 81 组光强,采样数 $N(m \times n) = 81$ 。测量系统中,起偏器 P 和检偏器 A 的透光轴方位角、旋转波片 C_1 和 C_2 的初始方位角和相位延迟如表 1 所示。

表 1 系统元件参数值

Tab.1 System component parameter values

Element	Parameter	Calibration value/ $^\circ$
Polarizer P	Orientation A_s	45
Waveplate C_1	Initial orientation c_1	0
Waveplate C_1	Retardation A_1	90
Waveplate C_2	Initial orientation c_2	0
Waveplate C_2	Retardation A_2	90
Analyzer A	Orientation P_s	-45

初始值的选取能够直接影响迭代速度与计算结果,SADE 算法的初始种群通常是在参数求解范围内

随机生成的,但若生成的初始解偏离准确值较远则会增加计算量,由超定方程组确定初始种群。

实际应用中,对于理想情况下各向同性膜厚标准样品,穆勒矩阵中的 16 个元素都有具体的物理意义,其中 m_{11} 只包含光强信息,通常为了直观地表示光束的偏振态,对光束的斯托克斯矢量进行归一化处理,处理后的样品穆勒矩阵中, m_{11} 和 m_{21} 的值为 1, m_{13} 、 m_{14} 、 m_{23} 、 m_{24} 、 m_{31} 、 m_{32} 、 m_{41} 和 m_{42} 默认均为 0,减少了待拟合参数个数,降低了计算复杂度。

用 SADE 算法对表 1 中的初始种群开始迭代,样本采集的周期为 0.75 s,设定当收敛值小于 1,或者达到最大迭代次数 100 时停止迭代,迭代曲线如图 3 和图 4 所示。

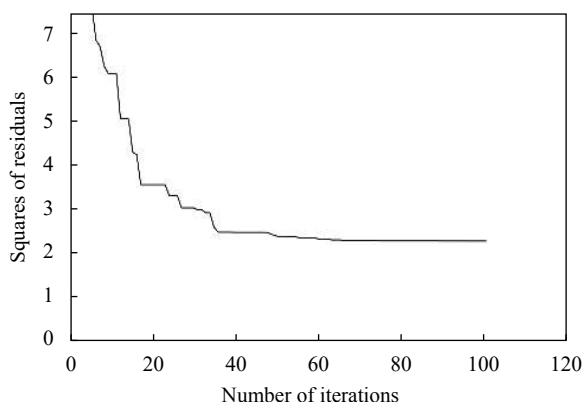


图 3 104.2 nm SiO₂/Si 标准样品迭代曲线

Fig.3 Iterative curve of 104.2 nm SiO₂/Si standard sample

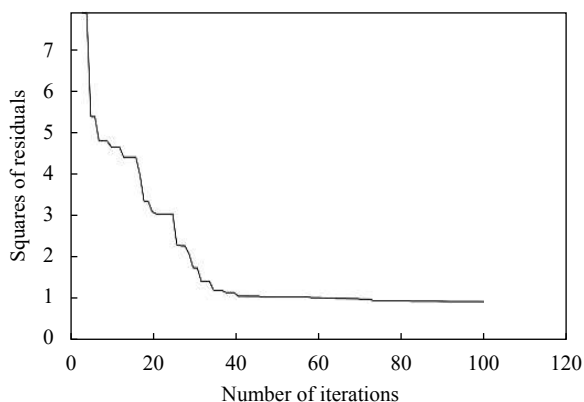


图 4 398.4 nm SiO₂/Si 标准样品迭代曲线

Fig.4 Iterative curve of 398.4 nm SiO₂/Si standard sample

目标函数的迭代曲线图中可以看出,两个标准样品分别迭代到 68 次和 82 次时,残差平方和收敛到最小值 0.97 和 1.01,收敛时变异算子 F 分别为 0.5 和 0.2,

交叉概率 P_{cr} 分别为 0.3 和 0.4。可以看出,用 SADE 算法进行迭代,不仅具有较快的收敛速度,可以在较短的时间内计算出精确值,同时在不断调整步长情况下,可以避免计算结果陷入局部最优解从而找到全局最优解。

图 5 和图 6 给出了拟合得到的样品穆勒矩阵光谱图与双旋转补偿器穆勒矩阵椭圆偏测量系统 (DRC-MME) 测量得到的穆勒矩阵光谱图的比较,两种方法都是利用同样的入射和出射光强值,测量条件也相同,表 2 和表 3 分别为两个样片的穆勒元素的均方根误差 (MSE) 表^[16]。

分析误差数据可知,退偏误差^[17]是穆勒矩阵计算时主要的误差源之一,在 300~900 nm 光谱范围内计算了穆勒光谱图对应的退偏指数 $DI(0 \leq DI \leq 1)$ 最小分别为 0.5127 和 0.7362,退偏效应的存在对最终的测量准确度不会造成明显的影响。

对于各向同性的标准样品,包含光学常数和结构信息的元素为 m_{12} 、 m_{21} 、 m_{33} 、 m_{34} 、 m_{43} 和 m_{44} ,基于以上元素的光谱曲线,用反演法推算出样片的偏振角 (ψ) 和相位差 (Δ)。但为了避免二次反演求解的误差,直接将传输矩阵公式 (17) 代入光强公式进行迭代求解,薄膜厚度 (d)、薄膜折射率 (n) 与消光系数 (k) 则可以通过关联的椭圆方程求解得到。SiO₂/Si 薄膜为透明薄膜,则消光系数 k 为 0,所以测量求出的椭圆参数即可以得到薄膜厚度与折射率。

图 7 和图 8 分别表示 104.2 nm 和 298.4 nm 的 SiO₂/Si 膜厚标准样品折射率和消光系数随入射光波长的变化图,选取波长 633 nm 时的折射率计算样片的膜厚值并进行分析。

VLSI 样片的 NIST 校准结果分别是 (104.2±0.4) nm 和 (398.4±0.4) nm,表 4 为两种膜厚校准值与计算值之间的误差,用 SADE 算法的仿真结果都在校准误差允许范围内,并且厚度的计算误差均小于 1%。同时,与穆勒元素的计算误差基本一致,验证基于 SADE 算法膜厚计算结果的准确性。由于自适应差分进化算法是根据每一次父代种群的适应度不断调整下一次迭代的步长,对于目标解的搜索方向具有很好的指导作用,能避免陷入周期性的局部最优解,准确求出膜厚值,对于多目标求解的复杂优化问题具有较好的适用性。

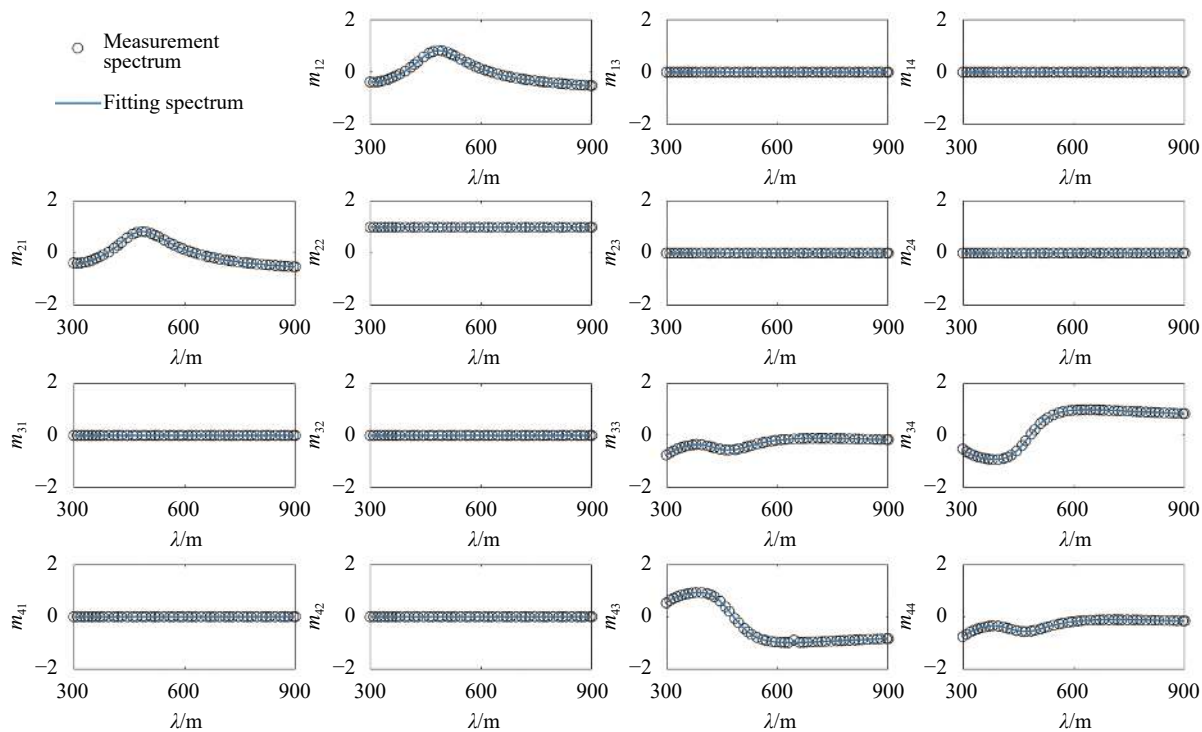


图 5 104.2 nm SiO₂/Si 标准样片穆勒光谱图

Fig.5 Mueller spectrum of 104.2 nm SiO₂/Si film thick sample

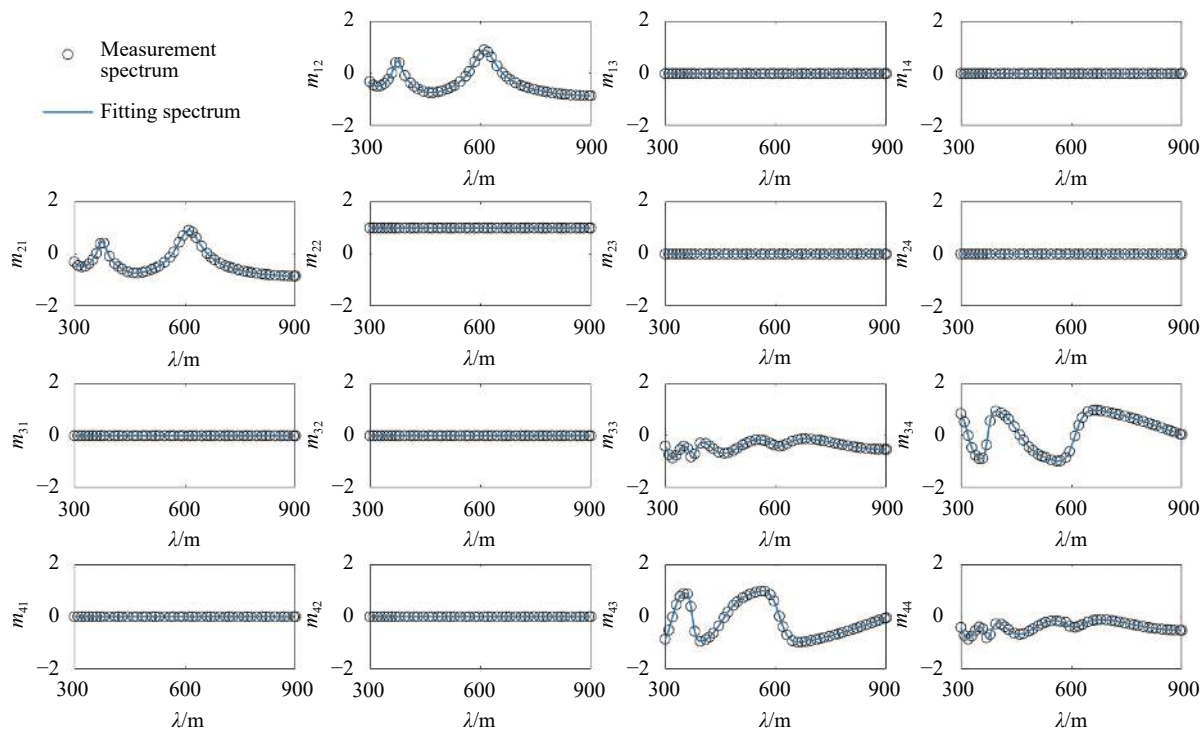


图 6 398.4 nm SiO₂/Si 标准样片穆勒光谱图

Fig.6 Mueller spectrum of 398.4 nm SiO₂/Si film thick sample

表 2 104.2 nm 样片均方误差

Tab.2 MSE of 104.2 nm sample

Mueller element	Fitting error
m_{12}	0.386
m_{21}	0.386
m_{33}	0.258
m_{34}	0.232
m_{43}	0.374
m_{44}	0.392

表 3 398.4 nm 样片均方误差

Tab.3 MSE of 398.4 nm sample

Mueller element	Fitting error
m_{12}	0.412
m_{21}	0.412
m_{33}	0.365
m_{34}	0.409
m_{43}	0.384
m_{44}	0.422

表 4 样品厚度计算值

Tab.4 Calculated value of sample thickness

Film thickness/nm	Calculated film thickness/nm	Relative error
104.2±0.4	103.8±0.6	0.38%
398.4±0.4	397.8±0.6	0.15%

3.3 比较实验

由于文中实验是一个多参数优化问题,优化的速度和收敛结果的精确度是优化方法的重点,为了进一步验证 SADE 算法在收敛速度和计算精度上的特点,将常用的 LM 算法带入模型中进行求解。

图 9 号和图 10 分别表示用 LM 算法对两种规格样片的迭代曲线,比较表 5 中两种算法在膜厚计算时的拟合结果,可以发现虽然在 LM 算法迭代次数和收敛时间较小,可以更快地达到目标值,但 SADE 算法得到的膜厚值具有较小的相对误差,且两者在迭代时间上并无太大区别,综合分析,SADE 算法在系统的

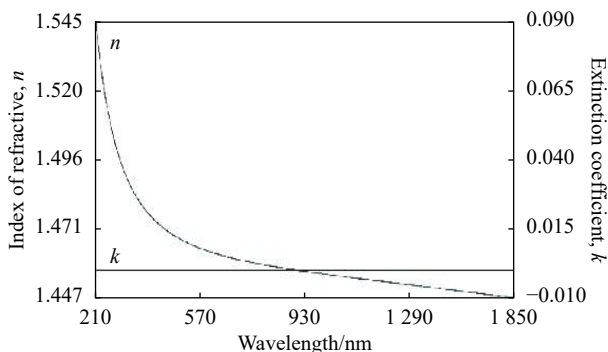


图 7 104.2 nm SiO₂/Si 标准样片折射率和消光系数

Fig.7 Index of refractive and extinction coefficient of 104.2 nm standard sample

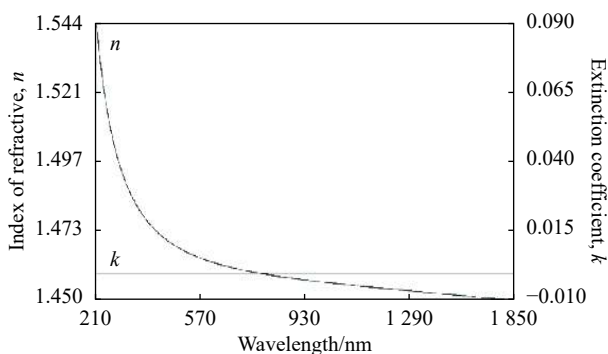


图 8 398.4 nm SiO₂/Si 标准样片折射率和消光系数

Fig.8 Index of refractive and extinction coefficient of 398.4 nm standard sample

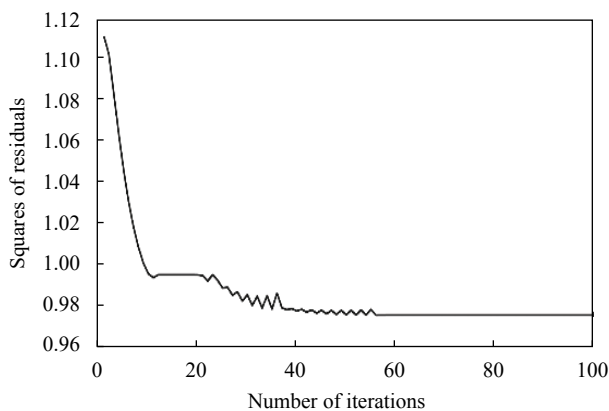


图 9 104.2 nm SiO₂/Si 标准样片迭代曲线

Fig.9 Iterative curve of 104.2 nm SiO₂/Si standard sample

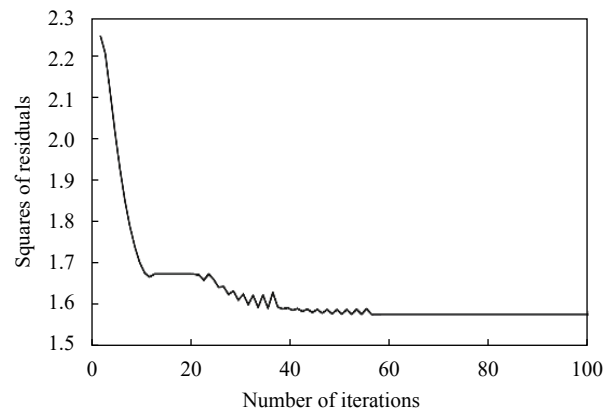


图 10 398.4 nm SiO₂/Si 标准样片迭代曲线

Fig.10 Iterative curve of 398.4 nm SiO₂/Si standard sample

表 5 比对实验结果

Tab.5 Comparison of experimental results

Film thickness /nm	Algorithm	Number of iterations	Iteration time/s	Calculated film thickness/nm	Relative error
104.2	SADE	68	1.22	103.8±0.6	0.38%
	LM	54	1.13	104.6±0.6	0.78%
398.4	SADE	82	1.47	397.8±0.6	0.15%
	LM	56	1.21	401.1±0.6	0.82%

计算中有较高的精确度和较快的收敛速度。

3.4 测量结果的分析

为了分析测量结果的准确性,用具有溯源性的计量型椭偏仪测量标准样片,与文中实验的双旋转穆勒型椭偏仪不同,计量型椭偏仪的光源为单波长激光光源,其余组成部分依旧为光束准直器、起偏器、两个以 1:5 速率旋转的 1/4 波片、检偏器和光强探测器。

计量型椭偏仪测量得到的是经样品反射过后的偏振光椭偏参数 Ψ 和 Δ , 其中 Ψ 为偏振角, Δ 为偏振分量产生的相位差,与样品的膜厚 (d)、折射率 (n)、消光系数 (k) 等参数的关系可以表示为椭偏方程^[18]:

$$\tan \psi \exp(i\Delta) = \frac{r_{1p} + r_{2p} \exp(-i2\delta)}{1 + r_{1p} r_{2p} \exp(-i2\delta)} \cdot \frac{1 + r_{1s} r_{2s} \exp(-i2\delta)}{r_{1s} + r_{2s} \exp(-i2\delta)} \quad (18)$$

$$r_{1p} = (N_1 \cos \theta_0 - N_0 \cos \theta_1) / (N_1 \cos \theta_0 + N_0 \cos \theta_1) \quad (19)$$

$$r_{1s} = (N_0 \cos \theta_0 - N_1 \cos \theta_1) / (N_0 \cos \theta_0 + N_1 \cos \theta_1) \quad (20)$$

$$r_{2p} = (N_2 \cos \theta_1 - N_1 \cos \theta_2) / (N_2 \cos \theta_1 + N_1 \cos \theta_2) \quad (21)$$

$$r_{2s} = (N_1 \cos \theta_1 - N_2 \cos \theta_2) / (N_1 \cos \theta_1 + N_2 \cos \theta_2) \quad (22)$$

$$\delta = \frac{2\pi}{\lambda} dn_1 \cos \theta_1 \quad (23)$$

$$N_0 = n_0 - ik_0, \quad N_1 = n_1 - ik_1, \quad N_2 = n_2 - ik_2 \quad (24)$$

式中: δ 为两束相邻的反射光之间由于光程差引起的相位变化量; r_{1p} 和 r_{2p} 、 r_{1s} 和 r_{2s} 分别为偏振光的 p 分量和 s 分量在两个界面处的反射系数。其中, N_0 、 N_1 、 N_2 分别对应空气、薄膜和基底的复折射率; n_0 、 n_1 、 n_2 分别为空气、薄膜和基底的折射率; k_0 、 k_1 、 k_2 分别为三层介质的消光系数; θ_0 、 θ_1 、 θ_2 分别是入射光进入不同介质的入射角。将公式 (18)~(24) 代入公式 (17), 用一元二次方程的求根公式得到膜厚值的解:

$$d = \frac{i \ln(X) \lambda}{4\pi n_1 \cos \theta_1} \quad (25)$$

式中: X 是关于椭偏参数 Ψ 和 Δ 函数, 用计量型椭偏

仪测量两个 SiO_2/Si 样片, 得到的测量图如图 11 和图 12 所示。

查阅资料可得, 光在空气中的折射率为 1.0029, 在波长 633 nm 条件下, 偏振光在 Si 中的折射率为 3.882^[19], 同时将双旋转穆勒椭偏系统中拟合得到的 SiO_2 折射率 1.457 代入膜厚值公式 (25) 中, 计算得到样片的膜厚值, 如表 6 所示。

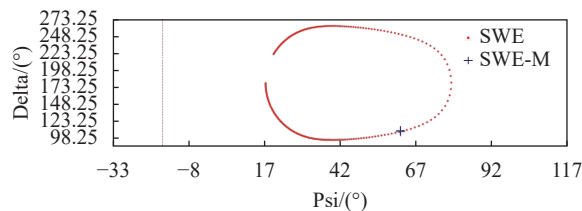


图 11 104.2 nm SiO_2/Si 标准样片椭偏参数测量图

Fig.11 Measurement of ellipsometry parameters of 104.2 nm SiO_2/Si standard sample

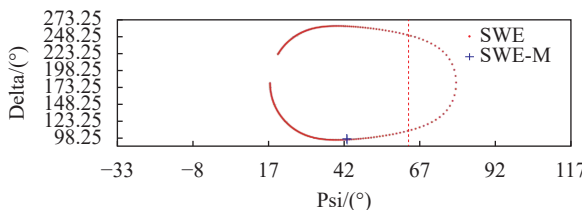


图 12 398.4 nm SiO_2/Si 标准样片参数测量图

Fig.12 Measurement of ellipsometry parameters of 398.4 nm SiO_2/Si standard sample

表 6 样品厚度计算值

Tab.6 Calculated value of sample thickness

Film thickness/nm	Calculated film thickness/nm	Relative error
104.2±0.4	104.1±0.6	0.09%
398.4±0.4	398.2±0.6	0.05%

可以发现, 通过计量型椭偏仪得到的膜厚值与校准值的相对误差也都小于 1%, 进一步验证了系统测量数据和数据拟合结果的准确性。

4 结 论

文中提出了一种基于自适应差分进化算法 (SADE) 求解纳米膜厚标准样板穆勒矩阵, 从而实现多膜厚参数和光学常数的计算。选用最小二乘模型对两个不同规格的膜厚标准样片进行仿真计算, 考虑到待拟合

参数的多样性,采用 SADE 算法求解超定方程组,并将计算结果与 NIST 校准结果进行比较,两个样片的相对误差均小于 1%。同时用计量型椭偏仪对所求折射率参数进行验证,膜厚严格计算值与校准值的相对误差小于 1%,表明用该方法在各向同性纳米薄膜表征中不仅具有计算方便、收敛速度快的特点,同时具有较高的准确性。

参考文献:

- [1] Fan Zhentao. Research on the advanced parameters problem of Mueller matrix ellipsometry system[D]. Chengdu: University of Chinese Academy of Sciences (Institute of Optics and Electronics, Chinese Academy of Sciences), 2019. (in Chinese)
- [2] Chen C, An I, Ferreira G M, et al. Multichannel Mueller matrix ellipsometer based on the dual rotating compensator principle [J]. *Thin Solid Films*, 2004, 455: 14-23.
- [3] Liu S, Chen X, Zhang C. Development of a broadband Mueller matrix ellipsometer as a powerful tool for nanostructure metrology [J]. *Thin Solid Films*, 2015, 584: 176-185.
- [4] Chen Zhenhua, Meng Ruoyu, Zhu Yuanhuan, et al. A collinear reflection Mueller matrix microscope for backscattering Mueller matrix imaging [J]. *Optics and Lasers in Engineering*, 2020: 106055.
- [5] Zhang Xiaodong, Han Zhiguo, Li Suoyin, et al. The ellipsometry analysis of the standard sample on nano-scale film thickness [J]. *China Measurement & Testing Technology*, 2019, 45(8): 14-18. (in Chinese)
- [6] Kim J H, Swaminathan M. Modeling of irregular shaped power distribution planes using transmission matrix method [J]. *IEEE Transactions on Advanced Packaging*, 2001, 24(3): 334-346.
- [7] Kim H B, Son J H, Wang C N, et al. Ellipsometric spectroscopy study of Ar ion-beam mixed SiO₂/Si/SiO₂ layers [J]. *Nuclear Instruments & Methods in Physics Research B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, 2004, 216: 367-371.
- [8] Li J J, Sun X B, Kang Q, et al. Polarization detection accuracy analysis of spectropolarimeter [J]. *Infrared and Laser Engineering*, 2018, 47(1): 0123002. (in Chinese)
- [9] Aspnes D E. Spectroscopic ellipsometry — Past, present, and future [J]. *Thin Solid Films*, 2014, 571: 334-344.
- [10] Li J, Ramanujam B, Collins R W. Dual rotating compensator ellipsometry: Theory and simulations [J]. *Thin Solid Films*, 2011, 519(9): 2725-2729.
- [11] Xiong Weili, Chen Minfang, Zhang Qian, et al. Parameter estimation of nonlinear systems model based on improved differential evolution [J]. *Application Research of Computers*, 2014, 31(1): 124-127. (in Chinese)
- [12] Lei Lihua, Zhang Xinyin, Wu Junjie, et al. Characterization of nanofilm parameters based on hybrid optimization algorithm [J]. *Infrared and Laser Engineering*, 2020, 49(2): 0213002.
- [13] Wang Shenwen, Ding Lixin, Zhang Wensheng, et al. Survey of differential evolution [J]. *Journal of Wuhan University (Natural Science Edition)*, 2014, 60(4): 283-292. (in Chinese)
- [14] Jiang Xu, Su Weian, Yin Chao. Study on the influence of nano-silicon film thickness on its reflection and absorption properties [J]. *Journal of Jiangxi University of Science and Technology*, 2020, 41(1): 90-96. (in Chinese)
- [15] Xu Junqi, Feng Xiaoli. Optical constants of multi-layer Thin films investigated by spectroscopic ellipsometry [J]. *Opto-Electronic Engineering*, 2009, 36(2): 29-33. (in Chinese)
- [16] Zhang Xinyin, Fu Yunxia, Li Qiang, et al. Parameter characterization of nano-films based on particle swarm optimization-neural network algorithm [J]. *Micronanoelectronic Technology*, 2020, 57(3): 237-242. (in Chinese)
- [17] Gil J J, Bernabeu E. Depolarization and polarization indices of an optical system [J]. *Optica Acta*, 1986, 33(2): 185-189.
- [18] Azzam R M. Photopolarimetric measurement of the Mueller matrix by Fourier analysis of a single detected signal [J]. *Optics Letters*, 1978, 2(6): 148.
- [19] Zhao Fuqing, He Xuan, Yang Guoqiang, et al. A hybrid iterated local search algorithm with adaptive perturbation mechanism by success-history based parameter adaptation for differential evolution (SHADE) [J]. *Engineering Optimization*, 2020, 52(3): 367-383.