

# 椭圆与光度法联用精确测定吸收薄膜的 光学常数与厚度\*

周 毅 吴国松 代 伟 李洪波 汪爱英<sup>†</sup>

(中国科学院宁波材料技术与工程研究所, 宁波 315201)

(2009 年 6 月 18 日收到; 2009 年 7 月 28 日收到修改稿)

介绍了一种同时利用椭圆仪和分光光度计精确测量薄膜光学常数的方法, 并详细比较了该方法与使用单一椭圆仪拟合结果的可靠性. 采用可变入射角光谱型椭圆仪(VASE)表征了 250—1700 nm 波段辉光放电法沉积的类金刚石薄膜, 研究发现当仅用椭圆参数拟合时, 由于厚度与折射率、消光系数的强烈相关性, 无法得到吸收薄膜光学常数的准确解. 如果加入分光光度计测得的透射率同时拟合, 得到的结果具有很好的惟一性. 该方法无需设定色散模型即可快速拟合出理想的结果, 特别适合于确定透明衬底上较薄吸收膜的光学常数.

**关键词:** 光学常数, 光谱型椭圆仪, 吸收薄膜, 透射率

**PACC:** 0760F, 7820D, 7865

## 1. 引 言

随着光电技术以及微电子技术的快速发展, 薄膜的应用领域越来越广, 各种厚度只有几百甚至数十纳米的单层或多层功能薄膜成为当前材料研究的热点. 薄膜的厚度  $d$ , 以及光学常数(折射率  $n$  和消光系数  $k$ ) 决定了薄膜的透射、反射和吸收等各种光学特性, 对于光学薄膜而言, 折射率和消光系数的精确测定是进行光学设计的前提条件. 对于半导体材料和器件, 薄膜的吸收光谱  $\alpha(\lambda)$  (吸收系数  $\alpha = 4\pi k/\lambda$ ) 可用来研究电子能带结构、光学跃迁、声子行为等重要物理性质<sup>[1]</sup>. 尤其是诸如薄膜晶体管、太阳能电池和图像传感器等现代电子器件的性能, 很大程度上取决于薄膜的光学性质<sup>[2]</sup>. 因此, 精确确定厚度与光学常数对于研究薄膜的性质具有重要意义.

确定薄膜厚度和光学常数最常用的方法有光度法以及椭圆法. 光度法基于分光光度计测量的透射率和反射率来计算光学常数, 具有仪器结构简单、操作方便的优点, 具体又可细分为包络线法、全谱拟合法等几种. 包络线法是最为常用的方法, 但只能用于弱吸收薄膜( $k \ll n$ ), 同时要求薄膜较厚以

产生至少 4—5 个干涉极值<sup>[3-5]</sup>. 全谱拟合法则需要借助色散模型, 选用不同的色散模型对结果影响很大<sup>[6]</sup>. 椭圆法具有无损非接触、高灵敏度、高精度的特点, 无需特别制备样品, 能对数纳米厚的超薄薄膜测量, 是目前精确测量薄膜光学常数最主要的方法<sup>[7]</sup>. 但是, 椭圆法的数学计算复杂, 在数据拟合时, 通常也需要借助色散模型减少拟合参数<sup>[8-10]</sup>. 在测量吸收薄膜, 特别是厚度小于 100 nm 的很薄的吸收薄膜时, 由于厚度与光学常数之间很强的关联性<sup>[11, 12]</sup>, 往往难以得到惟一的结果. 鉴于此, 本文采用椭圆仪和分光光度计同时联合使用, 建立了一种不需要色散模型即可精确得到吸收薄膜厚度和光学常数的方法.

## 2. 基本理论

### 2.1. 椭圆法的基本理论

关于椭圆仪测量光学常数的原理, 众多文献中已有详细的论述<sup>[7, 13]</sup>, 这里只做简要叙述.

光线以一定角度入射到薄膜样品上, 考虑光线在空气/薄膜界面和薄膜/衬底界面的多次反射,  $p$  偏振光和  $s$  偏振光的复数反射系数(分别用  $r_p$  和  $r_s$

\* 宁波市自然科学基金(批准号: 2008A610054)资助的课题.

<sup>†</sup> 通讯联系人. E-mail: aywang@nimte.ac.cn

表示)可由光的干涉原理计算得到. 定义反射系数比  $\rho = r_p/r_s$ , 也是一个复数, 它由空气的折射率  $n_0$ , 薄膜的厚度  $d_f$  和光学常数  $n_f, k_f$  以及衬底光学常数  $n_s, k_s$  决定, 可表示成

$$\begin{aligned} \rho &= r_p/r_s = \tan\psi \cdot e^{i\Delta} \\ &= F(n_0, n_f, k_f, d_f, n_s, k_s). \end{aligned} \quad (1)$$

式中,  $\psi$  和  $\Delta$  为椭圆参数, 由椭圆仪实际测量得到的, 可表示为

$$\psi = \arctan |r_p/r_s|, \quad (2)$$

$$\Delta = \delta_p - \delta_s, \quad (3)$$

其中,  $\delta_p$  和  $\delta_s$  分别为 p 和 s 偏振光的位相. 方程(2)和(3)一般称为椭圆方程. 因空气的折射率和衬底光学常数已知, 椭圆方程实际只有三个未知数. 传统单波长椭圆仪只能测量某一波长下的椭圆参数, 此时有薄膜厚度、折射率和消光系数三个量未知, 但仅有  $\psi$  和  $\Delta$  的两个方程, 显然无法解得光学常数. 即使是  $k=0$  的理想无吸收薄膜, 由于椭圆方程是复杂的超越方程, 仍旧无法得到解析解, 只能借助于计算机拟合的方法求解. 光谱型椭圆仪 (spectroscopic ellipsometry, SE) 能同时测量多个波长下的椭圆参数, 可以得到光学常数随波长的色散关系. 假设可同时测量  $N$  个波长, 则可得到  $2N$  个椭圆方程, 未知参数有  $N$  个波长下的  $n_f$  和  $k_f$ , 以及薄膜厚度  $d_f$ , 共  $2N+1$  个, 仍然大于方程个数. 如果薄膜在一部分波段是透明的, 则可先用该波段的数据拟合来确定薄膜厚度, 继而推得整个波长范围内的光学常数; 否则, 若薄膜无透明区域, 要想直接得到光学常数会十分困难.

拟合时, 首先要建立物理模型, 然后软件根据建立的模型计算出  $\psi$  和  $\Delta$ , 并与测量值比较. 采用均方误差  $\sigma$  (mean square error, MSE) 来评价模型计算值与实验测量值的符合程度. 椭圆参数的反演拟合实际上就是寻找  $\sigma$  最小值的过程,  $\sigma$  越小, 计算值与实验值误差越小, 所得结果越可信.  $\sigma$  定义为

$$\begin{aligned} \sigma &= \frac{1}{2N - M} \sum_{i=1}^N \left[ \left( \frac{\psi_i^{\text{mod}} - \psi_i^{\text{exp}}}{\sigma_{\psi,i}^{\text{exp}}} \right)^2 \right. \\ &\quad \left. + \left( \frac{\Delta_i^{\text{mod}} - \Delta_i^{\text{exp}}}{\sigma_{\Delta,i}^{\text{exp}}} \right)^2 \right], \end{aligned} \quad (4)$$

其中,  $N$  为椭圆仪同时测量的波长数量, 即获得的  $\psi$  和  $\Delta$  总对数;  $M$  为所选取拟合参数的数目;  $\psi_i^{\text{exp}}$  和  $\psi_i^{\text{mod}}$ ,  $\Delta_i^{\text{exp}}$  和  $\Delta_i^{\text{mod}}$  分别为测量和根据模型计算的  $\psi$  和  $\Delta$  值;  $\sigma_{\psi,i}^{\text{exp}}$  和  $\sigma_{\Delta,i}^{\text{exp}}$  为  $\psi$  与  $\Delta$  值的测量误差, 由仪器精度决定.

用不同方法拟合时, 参数个数  $M$  可能不同, 对  $\sigma$  有一定的影响, 为了统一比较标准, 我们定义

$$\sigma_0 = \frac{1}{2N} \sum_{i=1}^N \left[ \left( \frac{\psi_i^{\text{mod}} - \psi_i^{\text{exp}}}{\sigma_{\psi,i}^{\text{exp}}} \right)^2 + \left( \frac{\Delta_i^{\text{mod}} - \Delta_i^{\text{exp}}}{\sigma_{\Delta,i}^{\text{exp}}} \right)^2 \right]. \quad (5)$$

评价一种拟合方法的好坏, 主要标准是用该方法能否快速收敛得到最小的  $\sigma_0$ , 所以  $\sigma_0$  的绝对大小并不是最重要的, 还要考察拟合过程中不同假定厚度时的  $\sigma_0$  值相对于最小  $\sigma_0$  的大小, 因此我们定义“归一化  $\sigma_0$ ”—— $\sigma_0^n$  (normalized  $\sigma_0$ ) 的概念, 它等于  $\sigma_0$  除以最小  $\sigma_0$  值, 显然  $\sigma_0^n \geq 1$ .  $\sigma_0^n$  越接近 1, 该拟合与最佳拟合相差越小.

## 2.2. 光度法的基本理论

具有复折射率  $N_f = n_f + ik_f$ , 位相厚度  $\delta = \frac{2\pi}{\lambda} N_f d_f$  的薄膜, 镀制在折射率为  $n_s$  的衬底上, 光从薄膜一侧的空气垂直入射时总反射率  $R$  和透射率  $T$  可表示为<sup>[14]</sup>

$$R = R_f^+ + \frac{T_f^2 R_b}{1 - R_f^- R_b}, \quad (6)$$

$$T = \frac{T_f T_b}{1 - R_f^- R_b}. \quad (7)$$

其中  $R_f^+$  和  $R_f^-$  分别是空气侧入射和从衬底侧入射时薄膜的强度反射率,  $T_f$  是薄膜的强度透射率 (均不计衬底背反射). 与其对应的振幅反射系数  $r_f^+, r_f^-$  以及振幅透射系数  $t_f$  可由下列公式算得:

$$r_f^+ = \frac{(n_0 - n_s) \cos\delta + i(n_0 n_s / N_f - N_f) \sin\delta}{(n_0 + n_s) \cos\delta + i(n_0 n_s / N_f + N_f) \sin\delta}, \quad (8)$$

$$r_f^- = \frac{(n_s - n_0) \cos\delta + i(n_0 n_s / N_f - N_f) \sin\delta}{(n_s + n_0) \cos\delta + i(n_0 n_s / N_f + N_f) \sin\delta}, \quad (9)$$

$$t_f = \frac{2n_0}{(n_0 + n_s) \cos\delta + i(n_0 n_s / N_f + N_f) \sin\delta}. \quad (10)$$

则强度反射率和透射率为

$$R_f^+ = r_f^+ (r_f^+)^*, \quad (11)$$

$$R_f^- = r_f^- (r_f^-)^*, \quad (12)$$

$$T_f = \frac{n_s}{n_0} t_f t_f^*. \quad (13)$$

(6)和(7)式中的  $R_b$  和  $T_b$  是衬底/空气界面的强度反射率和透射率, 计算公式为

$$R_b = \frac{(n_0 - n_s)^2}{(n_0 + n_s)^2} = 1 - T_b, \quad (14)$$

由此我们看出,  $R$  和  $T$  同样决定于薄膜的厚度与光

学常数.

### 3. 实验方法

#### 3.1. 样品制备

采用自主设计、韩国 J & L 公司加工制造的 P600 型混合等离子体沉积设备,通过辉光放电法制备类金刚石(DLC)薄膜,工作气体为  $C_2H_2$ . 衬底为 1 mm 厚的石英玻璃,放入腔体前依次用去离子水、丙酮和无水乙醇超声波各清洗 10 min,最后吹干,置于基架上放入真空室.当真空度达到  $2.5 \times 10^{-3}$  Pa 时,通入流量为 40 ml/min 的 Ar 气,在 -100 V 偏压下对样品刻蚀 5 min,充分去除衬底表面存在的各种污染物.随后,衬底施加 -300 V 的脉冲偏压,通入流量为 50 ml/min 的  $C_2H_2$  开始辉光放电薄膜沉积,调控腔体的工作压强为 0.67 Pa,薄膜沉积时间 40 min.

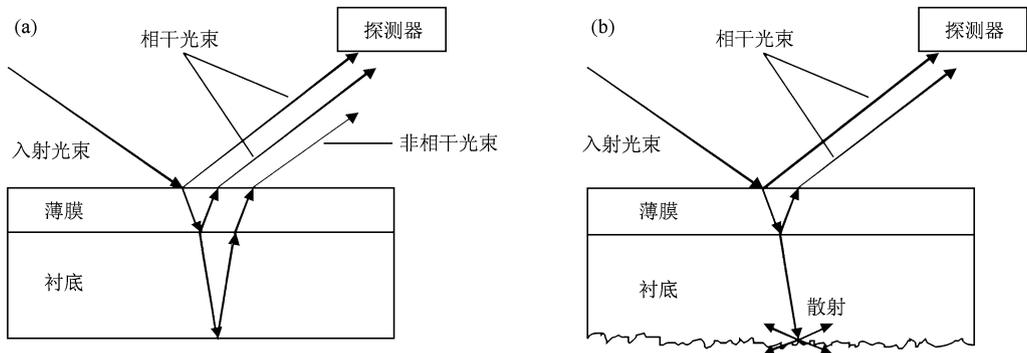


图 1 椭偏测量的光路示意图 (a)衬底背面为光学平面,(b)衬底背面为粗糙表面

### 4. 结果与讨论

衬底光学常数的准确是采用椭偏仪精确测定薄膜光学常数的前提.为此,本研究中并没有采用 WVASE32 软件自带的材料数据库中石英的光学常数,而是使用椭偏仪单独测定了石英玻璃在 250—1700 nm 范围内的光学常数.在该波段内石英完全透明,为后面的研究带来了方便.

拟合之前必须建立物理模型,考虑到薄膜/空气界面并不是理想的光滑平面,尺度远远小于波长的微观粗糙层散射很小,若在表面添加一层粗糙层,既符合实际情况又可使拟合结果大大改善<sup>[15-17]</sup>.在本研究中选用如图 2 所示的模型,表面粗糙层由 50% 薄膜和 50% 空隙组成,其光学常

#### 3.2. 测试方法

椭偏测试采用美国 Woollam 公司生产的 M-2000DI 可变入射角光谱型椭偏仪(variable angle spectroscopic ellipsometry, VASE),该椭偏仪  $\psi$  与  $\Delta$  精度优于  $0.015^\circ$ ,波长范围 190—1700 nm,共 714 个波长通道.从图 1(a) 椭偏测量时的光路示意图可看到衬底下表面背反射的非相干光会进入探测器影响测量结果,为避免背反射光的干扰,在椭偏测量前用喷砂的方法将石英背面处理成如图 1(b) 的粗糙表面.入射角选用  $55^\circ$ ,  $65^\circ$  和  $75^\circ$ ,数据分析计算采用仪器自带的 WVASE32 软件,该软件基于 Levenberg-Marquardt 算法可以快速反演拟合椭偏参数.利用美国 Perkin Elmer 公司的 Lambda 950 型紫外/可见/近红外分光光度计测量垂直入射时样品的透射率,测量波长为 250—1700 nm,扫描步长 1 nm.

数用 Bruggeman 有效介质近似(effective medium approximation, EMA)<sup>[18-20]</sup>理论处理.

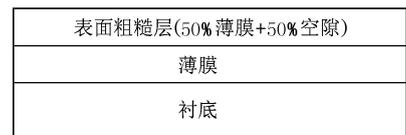


图 2 椭偏拟合采用的物理模型

#### 4.1. 单一椭偏参数拟合的分析

由上文分析可知,当薄膜有吸收时,仅使用椭偏数据(简称 SE 方法)无法直接拟合所有未知数.所以,基本的策略就是先确定或假设薄膜的厚度,然后再拟合  $\psi$  与  $\Delta$ ,寻找最小的  $\sigma$  来求解.

1) 先不考虑粗糙层, 根据经验, DLC 薄膜在波长 1000 nm 以上的红外区吸收较弱, 选用带有 Urbach 吸收的柯西色散模型, 很快可以得到较好的拟合结果 ( $\sigma = 0.5632, d_f = 62.526$  nm).

2) 把拟合范围扩展到 250—1700 nm, 由于薄膜吸收较大, 无法再采用简单的柯西模型描述. 采用普通拟合方法, 固定厚度值  $d_f = 62.526$  nm 不变, 选择  $n_f$  和  $k_f$  作为可变的拟合量, 经过一段时间的软件计算, 得到  $\sigma = 4.0452$ .

3) 采用如图 2 模型, 添加表面粗糙层并使它的厚度  $d_s$  与  $n_f, k_f$  同时作为拟合量 (仍然固定  $d_f$ ), 得到  $\sigma = 1.6256, d_s = 7.154$  nm.

尽管  $\sigma$  并不大, 但结果是否可靠还需要进一步探讨. 在 35—110 nm 厚度范围内选取 20 个值作为  $d_f$  的初值, 重复第 3 步, 得到不同厚度对应的  $\sigma$ . 将  $\sigma$  转换为  $\sigma_0^n$  值得到图 3(a), 可以看到, 当厚度小于 90 nm 时, 拟合结果都具有较小的  $\sigma_0^n$  值 (小于 2.5), 极小值不明显. 进一步缩小测试区间, 在 68—78 nm 的小范围内再选取 20 个厚度研究, 比较  $\sigma_0^n$  值 (图 3(b)), 当厚度  $d_f = 73.250$  nm 时, 出现了最小  $\sigma = 1.1812$ , 此时  $d_s = 2.780$  nm. 但是仔细考察图 3(b), 可以发现整个范围内的  $\sigma_0$  非常接近, 尤其是在 69—77 nm 内,  $\sigma_0^n$  值均小于 1.1, 意味着与最小的  $\sigma_0$  相比, 彼此之间差距不到 10%. 尽管当  $d_f = 73.250$  nm 时  $\sigma_0$  是最小的, 但如果考虑到测量时仪器的各种误差以及样品表面的非完美性, 那么几乎可以认为 69—77 nm 的拟合结果都相当满意. 表 1 列出了该范围内 5 个代表性厚度值的结果, 将它们拟合得到的折射率  $n$  曲线进行比较, 如图 4 所示, 大多数波长下它们之间有着显著的差别——薄膜厚度 2 nm 的不确定度就可能带来折射率 0.01 以上的误差, 而对于  $n$  的测定, 至少要求精确到 0.01 才是有意义的. 也就是说, 在完全不同的光学常数与厚度的组合下, 都能得到很好的拟合结果.

吸收薄膜厚度与光学常数呈现出这种强烈的关联性, 使得要精确测定光学常数变得非常困难<sup>[12,21,22]</sup>. Hilfiker 等<sup>[23]</sup> 提出“惟一性区间”(uniqueness region)的概念来评价拟合结果的可靠程度. 归一化 ( $\sigma$  或  $\sigma_0$ ) 值小于 1.1 的厚度区间称为惟一性区间, 该区间越小越好. 在本研究中, 该值约为 8 nm, 因此可以这样认为, 仅使用椭偏仪不仅无法得出吸收薄膜的厚度, 更不能精确确定该薄膜的光学常数.

表 1 两种方法拟合结果的比较

拟合方法	$d_f/\text{nm}$	$d_s/\text{nm}$	$\sigma$	$\sigma_0$	$\sigma_0^n$
SE	69.829	4.594	1.2772	1.0426	1.0814
	71.408	3.870	1.2089	0.9869	1.0236
	73.250	2.780	1.1812	0.9641	1
	75.618	1.023	1.2226	0.9981	1.0352
	77.197	0	1.2902	1.0532	1.0924
SE + T	69.632	3.781	1.4335	1.2111	1.3353
	70.684	3.764	1.2128	1.0246	1.1297
	72.213	3.601	1.0737	0.9069	1
	75.421	2.728	1.5968	1.3490	1.4874
	77.000	2.035	2.0495	1.7314	1.9091

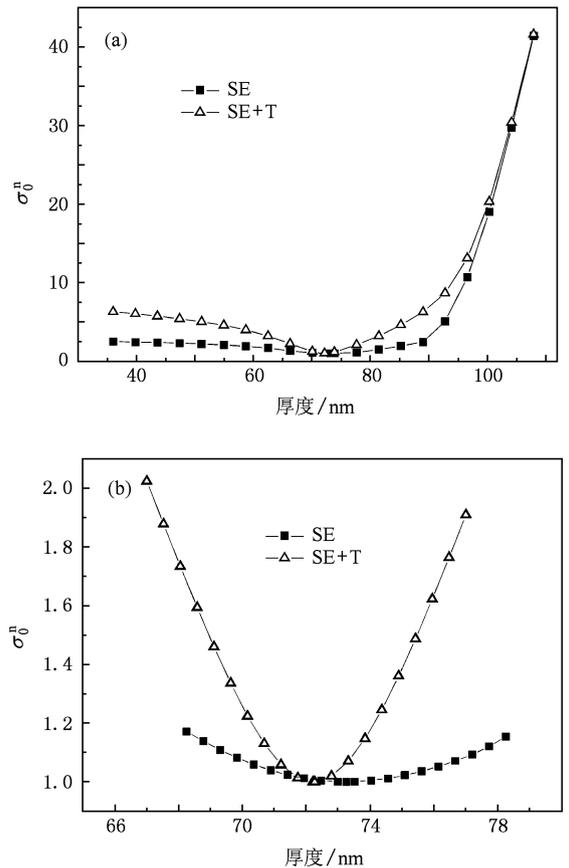


图 3 SE 与 SE + T 方法得到的  $\sigma_0^n$  随厚度  $d_f$  的变化关系 (a) 35—110 nm, (b) 68—78 nm

#### 4.2. 透射率与椭偏参数同时拟合的分析

吸收薄膜椭偏法拟合出现光学常数关联性的根本原因, 在于未知参数的数量大于方程数, 椭偏方程无惟一解, 这直接导致了一定范围内不同的  $d, n, k$  组合都可产生较好的拟合结果, 从而使结果离散性大. 要解决这一问题, 可以从两方面入手: 第一, 减少未知数. 通常椭偏拟合软件都带有很多色

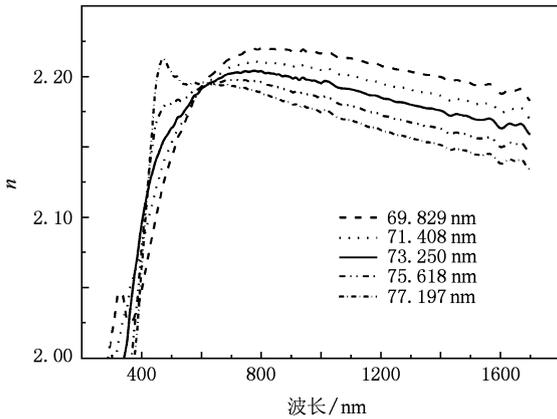


图4 样品在假定不同厚度下 SE 方法拟合得到的折射率  $n$

散关系数学模型,如适用于透明或弱吸收材料的 Cauchy 方程,适用于金属的 Drude 模型,适用于半导体的 Lorentz 模型,通过光学常数的参数化,大大减少了未知数的个数.但该方法的缺点需要对材料的物理性质有一定的了解才能决定使用何种模型;而且由于材料在不同的波长区段光学性质常常截然不同,需选用不同的模型.单一模型的错误选择可能导致忽略掉一些光学常数的细微变化.第二,增加方程的数量,提供更多的限定条件.采用多入射角虽然得到了更多数据,但往往不能提供新的限定条件,它所起的作用通常是减小实验误差,验证拟合结果的正确性<sup>[10,11]</sup>.

由前面的分析可知,薄膜反射率  $R$  和透射率  $T$  这样的强度量同样决定于薄膜的光学常数.因而增加  $R$  或  $T$ ,可以提供更多有利于光学常数反演计算的信息.但是,由于反射率测量比较困难,精度一般不能满足光学常数测定的要求<sup>[4,24]</sup>,因此最理想的方法还是测量薄膜在透明衬底上的透射率  $T$ ,将其与椭圆仪获得的  $\psi$  和  $\Delta$  同时拟合(以下简称 SE + T 方法),此时未知参数个数仍为  $2N + 1$ ,但方程个数为  $3N$ ,大于未知参数个数,可大大降低计算的难度.考虑到加入了透射率  $T$ , $\sigma$  公式需要修正为

$$\sigma = \frac{1}{2N - M} \sum_{i=1}^N \left[ \left( \frac{\psi_i^{\text{mod}} - \psi_i^{\text{exp}}}{\sigma_{\psi,i}^{\text{exp}}} \right)^2 + \left( \frac{\Delta_i^{\text{mod}} - \Delta_i^{\text{exp}}}{\sigma_{\Delta,i}^{\text{exp}}} \right)^2 + \left( \frac{T_i^{\text{mod}} - T_i^{\text{exp}}}{\sigma_{T,i}^{\text{exp}}} \right)^2 \right], \quad (15)$$

相应地, $\sigma_0$  也要做同样的修正.

拟合具体过程如下:首先将分光光度计测得的透射率转换成 WVASE32 软件的数据格式,将其与

$\psi$  和  $\Delta$  同时设为拟合参数.开始依然不添加粗糙层,拟合波段直接选择 250—1700 nm,与上一种 SE 方法不同的是, $d_f, n_f, k_f$  可以同时选作拟合量,而且并不需要设定初始值.一段时间计算后即可得到较小的  $\sigma$  值,同样再添加粗糙层,最终得到的拟合结果为  $d_f = 72.213 \text{ nm}$ ,  $d_s = 3.061 \text{ nm}$ ,  $\sigma = 1.0737$ .图 5 是该结果的拟合情况,模型计算的结果与实验测量值  $\psi, \Delta$  和  $T$  均符合得非常好.

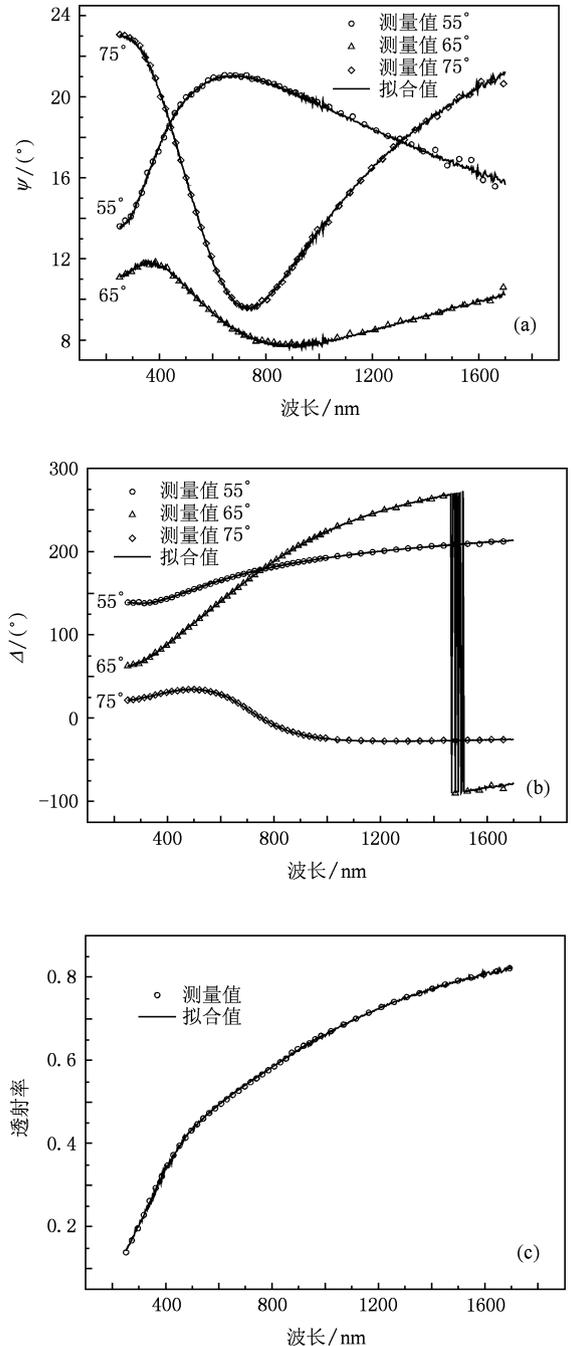


图5 SE + T 方法椭圆参数与透射率的拟合情况 (a)  $\psi$ , (b)  $\Delta$ , (c)  $T$

同样用上文的方法研究不同厚度时的拟合情况,如图3空心三角符号所示,使用 SE + T 方法  $\sigma_0$  的极小值变得非常明显,从图3(b)找出  $\sigma_0^n$  小于 1.1 的范围为 71—73.5 nm, 惟一性区间值仅为 2.5 nm, 优于 SE 方法,而且  $\sigma$  最小值正是刚才拟合得到的情况,因而可以认为一开始得到的  $d_f = 72.213$  nm 即是最佳拟合结果. 作为与 SE 方法对比,表1中同样列出了 SE + T 方法 69—77 nm 区间代表性的拟合结果.

图6给出了 SE 和 SE + T 两种拟合方法得到的光学常数,比较图中的实线与虚线: $n$  在整个范围内都有一定的差异,其中紫外光区最大差值可达 0.025, 可见以及红外区最大的偏差约为 0.005; 消光系数  $k$  在 600 nm 以下最大差值 0.04 以上, 红外区两种方法得到的  $k$  趋于一致. 总体上两种方法得到的光学常数差异是很明显的, 由于有了透射率的加入, SE + T 方法的结果更为可靠.

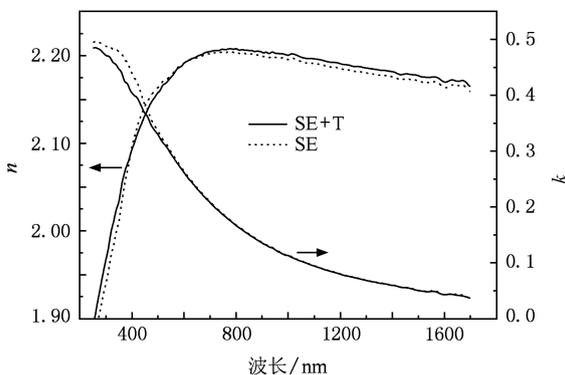


图6 SE与SE+T方法拟合得到的光学常数比较

DLC 是一种非晶半导体<sup>[25]</sup>, 吸收系数  $\alpha$  ( $\alpha = 4\pi k/\lambda$ ) 与光学带隙  $E_{opt}$  满足 Tauc<sup>[26]</sup> 方程

$$\alpha h\nu = A(h\nu - E_{opt})^2. \quad (16)$$

将  $(\alpha h\nu)^{1/2}$  对  $h\nu$  作图并进行线性拟合(如图7所示), 延长其直线部分与横坐标相交, 得到了该薄膜

的光学带隙  $E_{opt}$  为 0.87 eV.

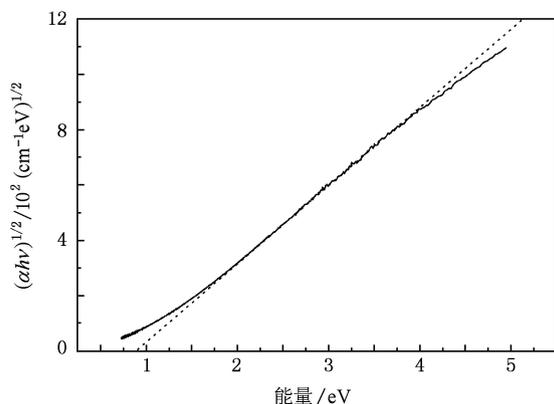


图7 用 Tauc 方程确定光学带隙

## 5. 结 论

建立了一种同时拟合椭圆参数与透射率快速精确求解吸收薄膜光学常数的方法. 在没有色散模型的情况下, 由于未知参数个数大于方程数, 使用单一椭圆法无法快速拟合出光学常数. 薄膜厚度与光学常数之间存在的强烈关联性, 导致惟一性区间较大, 在该厚度范围内模型值与实验值都可以符合得很好. 因此, 仅拟合椭圆参数无法得到吸收薄膜的准确光学常数. 同时拟合椭圆参数与透射率的实验结果表明该方法不需要色散模型和相关初始值, 拟合过程简便, 结果惟一性好, 惟一性区间远小于仅使用椭圆参数拟合的情况, 对于精确确定吸收薄膜特别是仅有几十纳米厚度薄膜的光学常数是十分有益的. 采用该方法精确测定了 250—1700 nm 范围内 DLC 薄膜的光学常数. 结果显示, DLC 薄膜在所研究波段均具有不同程度的吸收, 由 Tauc 公式确定其光学带隙为 0.87 eV.

- [1] Xu Z J 2007 *Detection and Analysis of Semiconductor* (Beijing: Science Press) p254 (in Chinese) [许振嘉 2007 半导体的检测与分析(北京: 科学出版社) 第 254 页]
- [2] Mulato M, Chambouleyron I, Birgin E G, Martinez J M 2000 *Appl. Phys. Lett.* **77** 2133
- [3] Wang C W, Wang J, Li Y, Liu W M, Xu T, Sun X W, Li H L 2005 *Acta Phys. Sin.* **54** 439 (in Chinese) [王成伟、王 建、

李 燕、刘维民、徐 洮、孙小伟、力虎林 2005 物理学报 **54** 439]

- [4] Gu P F, Chen H X, Zhen Z R, Liu X 2005 *Acta Phys. Sin.* **54** 3722 (in Chinese) [顾培夫、陈海星、郑臻荣、刘 旭 2005 物理学报 **54** 3722]

- [5] Tang J F, Gu P F, Li X, Li H F 2006 *Modern Optical Thin Film Technology* (Hangzhou: Zhejiang University Press) pp407—412

- (in Chinese)[唐晋发、顾培夫、李旭、李海峰 2006 现代光学薄膜技术(杭州:浙江大学出版社)第 407—412 页]
- [6] Chen Y P, Yu F H 2006 *Opt. Instru.* **28** 84 (in Chinese)[陈燕平、余飞鸿 2006 光学仪器 **28** 84]
- [7] Palik E D 1985 *Handbook of Optical Constants of Solids* (San Diego: Academic Press) pp89—110
- [8] Tompkins H G, Irene E A 2005 *Handbook of Ellipsometry* (Norwich: William Andrew Publishing) pp252—253
- [9] Herzinger C M, Yao H, Snyder P G, Celii F G, Kao Y C, Johs B, Woollam J A 1995 *J. Appl. Phys.* **77** 4677
- [10] Hilfiker J N, Bungay C L, Synowicki R A, Tiwald T E, Herzinger C M, Johs B, Pribil G K, Woollam J A 2003 *J. Vac. Sci. Technol. A* **21** 1103
- [11] Jarrendahl K, Arwin H 1998 *Thin Solid Films* **313** 114
- [12] McGahan W A, Johs B, Woollam J A 1993 *Thin Solid Films* **234** 443
- [13] Fujiwara H 2007 *Spectroscopic Ellipsometry: Principles and Applications* (Chichester: John Wiley & Sons) pp81—87
- [14] Macloed H A 2001 *Thin-film Optical Filters* 3rd Ed. (Bristol: Institute of Physics Publishing) pp27—69
- [15] Shen H J, Wang L J, Fang Z J, Zhang M L, Yang Y, Wang L, Xia Y B 2004 *Acta Phys. Sin.* **53** 2009 (in Chinese)[沈沪江、王林军、方志军、张明龙、杨莹、汪琳、夏义本 2004 物理学报 **53** 2009]
- [16] Aspnes D E, Theeten J B 1979 *Phys. Rev. B* **20** 3292
- [17] Tikhonravov A V, Trubetskov M K, Tikhonravov A A, Duparre A 2003 *Appl. Opt.* **42** 5140
- [18] McMarr P J, Blanco J R 1988 *Appl. Opt.* **27** 4265
- [19] Bruggeman D A G 1935 *Ann. Phys. -Berlin* **24** 636
- [20] Fujiwara H, Koh J, Rovira P I, Collins R W 2000 *Phys. Rev. B* **61** 10832
- [21] Franta D, Zajickova L, Ohlidal I, Janca J, Veltruska K 2002 *Diam. Relat. Mater.* **11** 105
- [22] Tompkins H G, Tasic S 2000 *J. Vac. Sci. Technol. A* **18** 946
- [23] Hilfiker J N, Singh N, Tiwald T, Convey D, Smith S M, Baker J H, Tompkins H G 2008 *Thin Solid Films* **516** 7979
- [24] Liang L P, Hao J Y, Qin M, Zhen J J 2008 *Acta Phys. Sin.* **57** 7906 (in Chinese)[梁丽萍、郝建英、秦梅、郑建军 2008 物理学报 **57** 7906]
- [25] Robertson J 2002 *Mat. Sci. Eng.* **37** 153
- [26] Tauc J, Grigorov R, Vancu A 1966 *Phys. Status Solidi* **15** 627

# Accurate determination of optical constants and thickness of absorbing thin films by a combined ellipsometry and spectrophotometry approach \*

Zhou Yi Wu Guo-Song Dai Wei Li Hong-Bo Wang Ai-Ying<sup>†</sup>

(Ningbo Institute of Material Technology and Engineering, Chinese Academy of Sciences, Ningbo 315201, China)

(Received 18 June 2009; revised manuscript received 28 July 2009)

## Abstract

A new approach for accurate measurement of the absorbing film thickness and optical constants by combined ellipsometry and spectrophotometry is introduced. The details are studied in terms of the mathematical models and formulats in comparison with the commonly used method which is only dependent on the ellipsometry data specifically. Using variable angle spectroscopic ellipsometry (VASE), the diamond-like carbon film deposited by a glow discharge technique was characterized at the wavelength range of 250—1700 nm. The results indicate that, generally, it is rather difficult to determine the thickness and optical constants of absorbing film accurately and rapidly due to the strong correlation between thickness and  $n$ ,  $k$ . By simultaneously fitting ellipsometry parameters and film transmittance, however, the optical constants could be obtained easily and accurately from a unique solution without any predetermined dispersion model. The fitting results of DLC show that this approach is a promising method to determine the thicknesses and optical constants of films, especially of the thin absorbing films.

**Keywords:** optical constants, spectroscopic ellipsometry, absorbing films, transmittance

**PACC:** 0760F, 7820D, 7865

\* Project supported by the Natural Science Foundation of Ningbo, China (Grant No. 2008A610054).

<sup>†</sup> Corresponding author. E-mail: aywang@nimte.ac.cn