

椭圆精确测定透明衬底上吸收薄膜的厚度及光学常数

李江 唐敬友 裴旺 魏贤华 黄峰

Accurate determination of thickness values and optical constants of absorbing thin films on opaque substrates with spectroscopic ellipsometry

Li Jiang Tang Jing-You Pei Wang Wei Xian-Hua Huang Feng

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 64, 110702 (2015) DOI: 10.7498/aps.64.110702

在线阅读 View online: <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.110702>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn/CN/Y2015/V64/I11>

---

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

基于磁/电介质混合型基体的宽带超材料吸波体的设计与制备

Design and fabrication of a broadband metamaterial absorber based on a dielectric and magnetic hybrid substrate

物理学报.2015, 64(7): 077801 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.077801>

硅太阳能电池的调制载流子红外辐射动态响应与参数分析

Infrared radiation dynamic response and parametric analysis for silicon solar cell using photocarrier radiometry

物理学报.2014, 63(22): 227801 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.63.227801>

基于 Mueller 矩阵椭圆仪的纳米压印模板与光刻胶光栅结构准确测量

Accurate measurement of templates and imprinted grating structures using Mueller matrix ellipsometry

物理学报.2014, 63(18): 180701 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.63.180701>

弹光调制型成像光谱偏振仪中的高精度偏振信息探测研究

The research of polarized information detection for photo-elastic modulator-based imaging spectropolarimeter

物理学报.2013, 62(6): 060702 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.62.060702>

用斜入射光反射差法无标记实时监测不同浓度兔 IgG 和山羊抗兔 IgG 反应的动力学过程

Label-free and real-time detection of interactional dynamic processes of rabbit IgG with different concentrations and goat anti-rabbit IgG by oblique-incidence reflectivity difference method

物理学报.2012, 61(6): 060703 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.61.060703>

# 椭偏精确测定透明衬底上吸收薄膜的厚度及光学常数

李江<sup>1)2)</sup> 唐敬友<sup>2)</sup> 裴旺<sup>1)</sup> 魏贤华<sup>2)</sup> 黄峰<sup>1)†</sup>

1) (中国科学院海洋新材料与应用技术重点实验室, 浙江省海洋材料与防护技术重点实验室,

中国科学院宁波材料技术与工程研究所, 宁波 315201)

2) (西南科技大学材料科学与工程学院, 绵阳 621010)

(2014年9月21日收到; 2015年1月14日收到修改稿)

椭偏仪难以精确测量透明衬底上吸收薄膜光学常数的原因: 1) 衬底的背面反射光为非相干光, 它的存在会极大的增加拟合难度; 2) 衬底光学常数(折射率和消光系数)的差异会影响测量的准确性, 而且会在吸收薄膜的光学常数中表现出来, 需要单独测量其光学常数; 3) 厚度与光学常数之间呈现强烈的关联性. 针对以上三个问题, 选择石英玻璃、载玻片、盖玻片和普通浮法玻璃作为研究对象. 采用折射率匹配法消除上述衬底背面反射光的影响. 结果显示, 折射率匹配法能够有效消除折射率在1.43—1.64、波长范围为190—1700 nm波段的石英、浮法玻璃等透明衬底的背面反射光. 之后, 通过拟合椭偏参数 $\psi$ 和垂直入射时的透过率 $T_0$ 分别得到以上衬底的折射率和消光系数. 拟合得到的结果与文献报道的趋势一致. 最后, 采用椭偏参数和透过率同时拟合的方法(SE+T法)得到类金刚石薄膜(沉积在石英玻璃上)和非晶硅薄膜(沉积在载玻片、盖玻片上)光学常数和厚度的准确解.

**关键词:** 背反, 折射率匹配, 吸收薄膜, 光学常数

**PACS:** 07.60.Fs, 78.20.Ci, 78.20.-e

**DOI:** 10.7498/aps.64.110702

## 1 引言

光谱椭偏仪(spectroscopic ellipsometry, SE)、反射率/透射率<sup>[1,2]</sup>被广泛应用于测量透明、半透明薄膜的厚度 $d_f$ 和光学常数(折射率 $n_f$ 和消光系数 $k_f$ ). 由于吸收薄膜的 $d_f$ 和 $n_f$ ,  $k_f$ 之间呈现强烈的关联性, 因此仅通过椭偏参数( $\psi$ ,  $\Delta$ )两个方程难以准确获得其光学常数<sup>[3,4]</sup>. 目前主要采用光学常数参数化法<sup>[5-8]</sup>来获取吸收薄膜的光学常数, 但该方法需要事先得到吸收薄膜的确切光学性质或光学常数, 才能确定振子(Lorentz, Tauc-Lorentz, Gaussian...)的类型、数量及放置的位置, 继而确定吸收薄膜的光学常数. 同时拟合椭偏参数和垂直入射时的透过率( $T_0$ )方法<sup>[9-11]</sup>(以下简称SE+T法)通过 $\psi$ ,  $\Delta$ ,  $T_0$ 三个方程可快速得到吸收薄膜的 $d_f$ ,

$n_f$ 和 $k_f$ , 原则上适用于任何吸收薄膜, 但此法要求吸收薄膜必须沉积在透明衬底上. 透明衬底的光学常数易受制造工艺、结晶度、杂质、缺陷等的影响而出现差异. 当涉及到透过率的拟合时, 衬底吸收系数的微小变化都有可能在吸收薄膜的光学常数中表现出来<sup>[3,12]</sup>. 因此, 需要单独测定透明衬底的光学常数. 而且双面抛光的透明衬底的背面反射光(以下简称背反)是非相干光, 其相位信息丢失, 会干扰椭偏参数的正确拟合, 必须予以消除<sup>[13-15]</sup>.

鉴于此, 本文选择盖玻片, 载玻片, 石英玻璃等透明衬底作为研究对象. 对于其背面反射光的影响, 采用折射率匹配方法予以消除. 然后, 结合椭偏参数 $\psi$ 和 $T_0$ 拟合得到各个衬底的光学常数. 对于沉积在盖玻片、载玻片上的非晶硅(a-Si)薄膜以及沉积在石英玻璃上的类金刚石(DLC)薄膜, 采用SE+T法获得其厚度和光学常数.

† 通信作者. E-mail: huangfeng@nimte.ac.cn

## 2 基本理论

光谱椭偏仪通过测量从被测样品反射或透射的电磁波偏振态的改变而求出平行于入射面的 p 偏振光和垂直于入射面的 s 偏振光的菲涅耳反射系数(分别用  $r_p, r_s$  表示)比值  $\rho$  为

$$\rho \equiv \tan(\psi) \exp(i\Delta) \equiv \frac{r_p}{r_s} \equiv f(n_0, n_f, k_f, d_f, n_s, k_s), \quad (1)$$

式中,  $\tan(\psi)$  表示 p, s 偏振光的振幅衰减比,  $\Delta$  表示 p, s 偏振光的相位差. 其中  $\psi, \Delta$  为椭偏参数, 它们由空气的折射率  $n_0$ , 薄膜厚度  $d_f$  和光学常数  $n_f, k_f$  以及衬底光学常数  $n_s, k_s$  决定. 因而  $n_s, k_s$  的准确获得是测定样品  $d_f, n_f, k_f$  的关键. 但由于制造工艺差异, 结晶度, 杂质、缺陷、气泡等的影响, 即使是同种材料的  $n_s, k_s$  也可能存在差异.

$\psi, \Delta$  由椭偏仪直接测量得到. 但我们感兴趣的是薄膜的  $d_f, n_f, k_f$ . 因此描述入射光源与空气/薄膜/衬底相互作用的光学模型(物理模型)被用于复杂的逆向数据分析. 光学响应( $\psi, \Delta, R/T$ )可以由任何光学模型产生<sup>[3]</sup>. 在对实际测量的  $\psi, \Delta, T$  进行拟合分析前, 需要根据薄膜的物理性质建立相应的光学模型. 然后测量软件会根据建立的模型计算出  $\psi, \Delta, T_0$ , 并与实际测量的值进行比较. 当模型产生的  $\psi, \Delta, T_0$  与测量的  $\psi, \Delta, T_0$  最接近时, 薄膜的  $d_f, n_f, k_f$  被找到. 而最小均方误差 MSE(mean square error) 被用于衡量拟合程度的好坏, MSE 定义为

$$\text{MSE}^2 = \frac{1}{2N - M} \sum_{i=1}^n \left[ \left( \frac{\psi_i^{\text{mod}} - \psi_i^{\text{exp}}}{\delta_{\psi,i}^{\text{exp}}} \right)^2 + \left( \frac{\Delta_i^{\text{mod}} - \Delta_i^{\text{exp}}}{\delta_{\Delta,i}^{\text{exp}}} \right)^2 \right], \quad (2)$$

式中, mod, exp 分别表示测量值和拟合值,  $\delta$  表示测量误差,  $N$  为测量的  $\psi, \Delta$  的对数,  $M$  为所选取拟合参数的对数. 如果加入  $T_0$  进行同时拟合, MSE 修正为

$$\text{MSE}^2 = \frac{1}{2N - M} \sum_{i=1}^n \left[ \left( \frac{\psi_i^{\text{mod}} - \psi_i^{\text{exp}}}{\delta_{\psi,i}^{\text{exp}}} \right)^2 + \left( \frac{\Delta_i^{\text{mod}} - \Delta_i^{\text{exp}}}{\delta_{\Delta,i}^{\text{exp}}} \right)^2 + \left( \frac{T_{0,i}^{\text{mod}} - T_{0,i}^{\text{exp}}}{\delta_{T_0,i}^{\text{exp}}} \right)^2 \right]. \quad (3)$$

## 3 实验方法

### 3.1 样品制备

采用北京科学仪器公司加工制造的 MSP-4200 B 型磁控溅射设备室温制备. a-Si 薄膜, Si 靶纯度为 99.9%. 衬底为盖玻片(厚度为 0.15 mm)、载玻片(厚度为 1.05 mm). 沉积前用丙酮、无水乙醇和去离子水超声波清洗后, 再用高纯  $N_2$  吹干后放入沉积室内基片托上. 当沉积室的背底真空低于  $3 \times 10^{-3}$  Pa, 通入流量为 30 ml/min 的 Ar 气, 调节沉积气压为 0.5 Pa. 采用直流电源起辉, 功率为 80 W, 沉积时间 2 min, 4 min 和 5 min.

DLC 薄膜采用自主研发的  $45^\circ$  双弯曲磁过滤阴极真空电弧(filtered cathode vacuum arc, FCVA) 技术沉积, 电弧阴极为圆梯形状的固体石墨靶(纯度 99.99%), 电弧电流控制在 60 A. 衬底为 0.7 mm 的石英玻璃, 清洗程序同上. 清洗后用高纯  $N_2$  吹干, 放入沉积室内基片托上, 待腔体真空度达到  $2.36 \times 10^{-3}$  Pa 时, 通入流量为 20 ml/min(标准状态)的 Ar 气, 在  $-400$  V 的偏压下对样品刻蚀 5 min, 然后对衬底交替施加  $-80$  V 和  $-140$  V 偏压进行薄膜沉积, 沉积时间 10 min.

### 3.2 测试方法

采用美国 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 a-Si, DLC 薄膜以及相应衬底的透射率, 扫描步长均为 1 nm. a-Si, DLC 薄膜的扫描波长范围分别为 300—1300 nm 和 200—1700 nm. 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), 测量范围 190—1700 nm,  $\psi, \Delta$  精度优于  $0.015^\circ$ , 可同时测量 714 个波长通道下的椭偏参数. 数据分析采用仪器自带的 WVASE32 软件. 该软件允许以反射模式进行多角度(入射角选用  $55^\circ, 65^\circ$  和  $75^\circ$ ) 分析, 同时允许导入透过率和反射率进行同时拟合分析.

## 4 折射率匹配方法消除透明衬底的背面反射光

双面抛光的透明衬底的背反是非相干光, 其相

位信息丢失, 它的存在会极大的增加拟合难度<sup>[16]</sup>因此在拟合前需要将其消除. 目前一般采用对衬底背面进行粗糙处理(简称背底粗糙)的方式消除背反或通过数学模型矫正背反. 通过数学模型矫正背反, 效果不明显且会引入额外的拟合变量. 而采用背底粗糙方法消除透明衬底的背反, 需要相应的打磨或喷砂工具, 消除背反的效果因人而异. 另外, 此法是一种破坏性技术, 且无法用于消除较薄或易碎透明衬底的背反.

2004年Hayton等<sup>[15]</sup>在浮法玻璃背面使用蓝丁胶有效抑制了该玻璃在紫外及可见光波段背反的影响. 此后Synowicki等<sup>[16]</sup>在前者的基础上, 探索了半透明胶带、指甲油、防晒霜、黑墨水、硅胶、凡士林、白乳胶等折射率匹配材料消除背反的效果. 采用不同的材料, 消除背反的效果不同. 图1所示为折射率匹配法的示意图. 它通过在衬底背面使用一种与衬底折射率相近的材料, 使测量光进入该匹配材料中, 然后使该光被散射掉以消除背反.

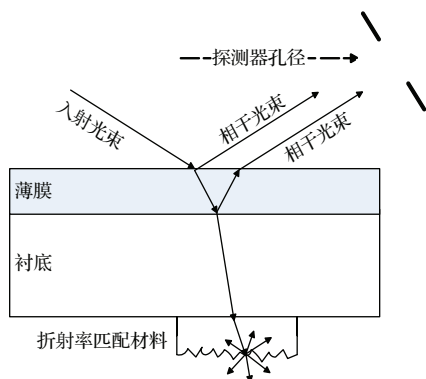


图1 采用折射率匹配法消除背反

Fig. 1. Suppress backside reflections from transparent substrates via index matching technique.

基于成本、使用的方便程度、消除背反的效果优劣考虑, 本文选择带磨砂的半透明胶带作为匹配材料. 图2给出了分别采用折射率匹配方法和背底粗糙法消除背反后的石英、康宁玻璃(Corning EAGLE XG)以及载玻片的折射率.

从图中可以看出折射率匹配法与背底粗糙法得到的结果在紫外、可见光、红外光谱区趋于一致. 说明折射率匹配法可有效消除折射率在1.43—1.64之间的透明衬底背反的影响. 本文采用的盖玻片为浮法玻璃, 厚度仅为0.15 mm、易碎, 难以使用背底粗糙法消除背反. 由于其折射率与载玻片接近, 本文采用折射率匹配法消除其背反. 图3所示为通过

数学模型矫正以及折射率匹配法消除背反后的盖玻片的 $\psi$ 数据. 图中 $\psi$ 数据在红外区出现了较大波动, 这主要是由于椭偏仪的光源在红外区强度较弱, 测量噪声较大引起的. 在波长 $< 300$  nm时, 因背反被盖玻片本身吸收, 两者的 $\psi$ 数据中并未表现出差异. 在波长 $> 300$  nm时, 未进行粗糙处理的盖玻片的 $\psi$ 数据中叠加了背反的强度信息. 背反的相位信息丢失<sup>[14]</sup>, 但其强度信息仍会叠加在有用的 $\psi$ 数据上. 因而, 含有背反的 $\psi$ 值会远高于有用的 $\psi$ 值. 从图中可以看出, 通过数学模型矫正背反效果并不理想.

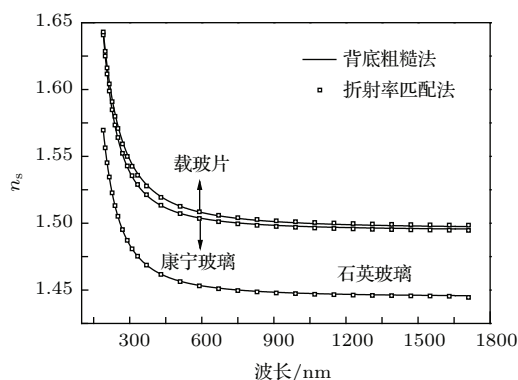


图2 背底粗糙法和折射率匹配法消除背反后的康宁、石英玻璃和载玻片的折射率

Fig. 2. Refractive index of the corning glass, quartz and glass slide substrates derived from ellipsometric data with backside reflections suppressed by roughening the back surface and using the index match technique respectively.

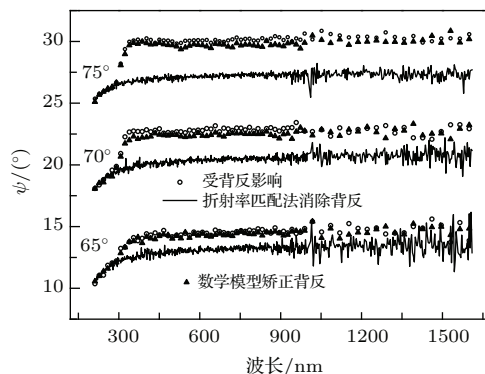


图3 采用折射率匹配法和数学模型矫正背反后的盖玻片的 $\psi$ 数据

Fig. 3. Ellipsometric.  $\psi$  data acquired on a cover glass substrate with and without backside reflections solutions which accounting for them in the analysis model, and suppressing them via index matching technique.

将磨砂半透明胶带作为折射率匹配材料, 平整的贴在透明衬底背面, 即可有效消除石英、浮法玻

璃在紫外、可见光及近红外波段的背反. 相对于背底粗糙法, 此法具有操作简单, 无需破坏衬底的优点. 此法特别适合于消除较薄或易碎透明衬底的背反.

## 5 提取透明衬底的光学常数

衬底光学常数的准确获得是测定样品厚度和光学常数的关键. 但由于制造工艺, 结晶度, 杂质、缺陷、气泡等的影响, 即使同种材料的  $n_s, k_s$  也可能存在差异<sup>[17]</sup>. 因此, 本文并没有采用 WAVSE32 软件自带的石英玻璃、载玻片及盖玻片的光学常数, 而是单独测定了以上衬底的光学常数. 对于其  $n_s$  通过拟合  $\psi$  数据得到, 而消光系数采用逐点拟合  $T_0$  (采用分光光度计测量得到) 的方式得到.

### 5.1 拟合得到透明衬底折射率

椭偏仪测量得到的衬底的  $\psi$  数据对衬底的折射率灵敏, 而  $\Delta$  数据主要对衬底上薄膜层、过渡层或粗糙层的厚度和光学性质有较高的灵敏度<sup>[12]</sup>, 因此本文通过拟合  $\psi$  数据得到  $n_s$ . 拟合前建立由表面粗糙层 (50% 空隙 + 50% 衬底) / 衬底层组成的两层光学模型. 粗糙层采用 Bruggeman 有效介质近似 (EMA) 理论<sup>[18,19]</sup> 处理, 衬底层采用带有 Urbach 吸收的 Cauchy 模型处理.

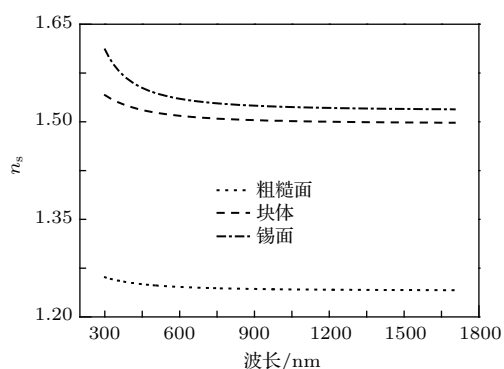


图4 普通浮法玻璃锡面、块体及粗糙面在 300—1700 nm 波段的折射率

Fig. 4. Refractive index of tin side and air side surface layers and bulk 1 mm clear float glass between 300 nm and 1700 nm.

浮法玻璃是玻璃溶液倒进溶解的锡中, 玻璃上浮而自然形成<sup>[20,21]</sup>. 在此期间部分锡渗透到玻璃下表面 (锡面), 锡面的折射率较浮法玻璃块体的折射率高 0.02—0.03<sup>[12]</sup>, 对后续光学薄膜分析有一定

影响, 因此在椭偏测量前要区别对待. 图 4 所示为普通浮法玻璃锡面、块体及粗糙面在 250—1700 nm 范围的折射率. 在可见光及红外光谱区拟合得到的锡面的折射率较块体高约 0.03. 这与文献报道的值是吻合的. 而浮法玻璃空气面粗糙面的折射率远低于衬底块体及锡面的折射率.

### 5.2 提取透明衬底消光系数

石英玻璃消光系数的差异主要体现在紫外区<sup>[17]</sup>. 浮法玻璃因含有氧化铁而表现出淡绿色, 它在可见光和近红外区 (500—1500 nm) 也存在吸收, 而  $k_s$  的差异也会在这个波段表现出来<sup>[12]</sup>. 从浮法玻璃呈现出的淡绿色可知, 衬底的吸收是玻璃块体本身的吸收, 而不是表面效应. 椭偏参数中的  $\Delta$  数据主要对衬底上薄膜层、过渡层或粗糙层的厚度和光学性质有较高的灵敏度, 而透明衬底的透过率却对块体的消光系数有较高的灵敏度. Kitamura 等<sup>[17]</sup> 利用 Sellmeier 方程, 通过拟合垂直入射时的透过率  $T_0$  得到石英玻璃的消光系数. Synowicki 等<sup>[12]</sup> 先利用椭偏仪测量得到衬底的折射率, 然后通过逐点拟合  $T_0$  得到浮法玻璃的消光系数. Zhao 等<sup>[22]</sup> 利用一般振子函数 (GenOsc), 通过同时拟合椭偏参数和  $T_0$  得到石英玻璃的消光系数. 上述方法均需事先测定衬底的厚度, 在拟合时均需将厚度固定. 而上述方法均有一个共同的特点, 即消光系数均是通过拟合  $T_0$  得到.  $T_0$  与消光系数  $k_s$  的关系可以表示为<sup>[17]</sup>

$$T_0(d) = \frac{(1-\rho)^2 e^{-\alpha_s d_s}}{1 - (\rho)^2 e^{-2\alpha_s d_s}}, \quad (4)$$

$$\rho = \frac{(n_s + 1)^2 + k_s^2}{(n_s - 1)^2 + k_s^2}, \quad (5)$$

$$\alpha_s = \frac{4\pi k_s}{\lambda}, \quad (6)$$

其中,  $\rho$  为透明衬底界面处的光谱反射率,  $\alpha_s$  为透明衬底的吸收系数. 由上式可知, 消光系数  $k_s$  由  $T_0$ 、衬底的折射率  $n_s$  和厚度  $d_s$  决定. 对于  $d_s$  本文采用游标卡尺测得. 为保证测量得到的  $T_0$  是准确的, 本文采用美国 Perkin Elmer 公司的 Lambda 950 型分光光度计测量得到  $T_0$ . 之后, 根据 (4)—(6) 式, 即可得到衬底的  $k_s$ . 因此, 本文在 WVASE32 软件中采用逐点拟合  $T_0$  的方式得到  $k_s$ .

图 5 给出了普通浮法玻璃 (厚度为 1 mm)、载玻片和盖玻片在 320—1450 nm 波段的  $T_0$  和  $k_s$ . 从

图中可以看出,普通浮法玻璃和载玻片的透射率在500—1500 nm波段表现出显著地衰减,该波段是浮法玻璃的特征吸收波段<sup>[12]</sup>.从图中可以看出,由于普通浮法玻璃和载玻片的厚度较厚,测量光通过的光程较长,因此其 $T_0$ 的测量对 $10^{-5}$ 或者更低量级的 $k_s$ 都是灵敏的.盖玻片的厚度较薄,从其 $T_0$ 中看不出明显的吸收,但从 $T_0$ 拟合得到的 $k_s$ 中,同样能发现其特征吸收.因此分析沉积在浮法玻璃上的薄膜的透射数据时,衬底自身的吸收需要与薄膜的吸收区分开.在SE+T法中表现为透过率的拟合值与测量值出现差异,拟合得到的结果偏离真实值.

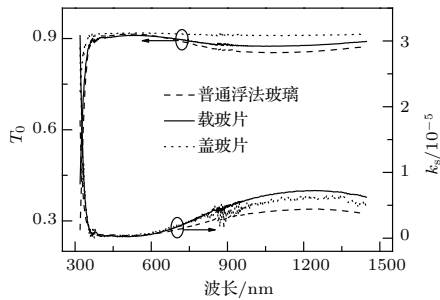


图5 普通浮法玻璃、载玻片和盖玻片在320—1450 nm波段的透过率及消光系数

Fig. 5. Intensity transmission data and extinction coefficient of soda-lime glass, cover glass and glass slide substrates between 320 nm and 1450 nm.

## 6 结果与讨论

前面我们已经拟合得到载玻片、盖玻片及石英玻璃的光学常数.但由于吸收薄膜的厚度和消光系数之间呈现强烈的关联性,因此仅通过 $\psi$ ,  $\Delta$ 两个方程难以准确获得吸收薄膜的 $n_f$ ,  $k_f$ 和 $d_f$ .本文采用的光谱型椭偏仪能同时测量714个波长点下的椭偏参数.假设同时选择 $M$  ( $M < 714$ )个波长点下的椭偏参数进行拟合,则可得到 $2M$ 个椭偏方程,未知参数有 $M$ 个波长下的 $n_f$ 和 $k_f$ 以及薄膜厚度 $d_f$ ,共 $2M + 1$ 个,大于方程个数.如果加入透过率 $T$ 进行同时拟合,则方程数为 $3M$ 个,可有效降低拟合的难度.

拟合前,建立由表面粗糙层(50%空隙+50%薄膜)/薄膜/衬底组成的三层物理模型.粗糙层同样采用EMA模型处理.由于薄膜的光学响应( $\psi$ ,  $\Delta$ ,  $T_0$ )可由任意光学模型产生,因此薄膜层可采用任意数学模型进行拟合.衬底层采用自测的衬底光学常数.之后将分光光度计测量的DLC薄膜和a-Si薄膜的透过率 $T_0$ 导入,和 $\psi$ ,  $\Delta$ 同时作为拟合

参数拟合得到薄膜的 $n_f$ ,  $k_f$ 和 $d_f$ .SE+T法的具体拟合步骤及其可靠性证明,在文献<sup>[11]</sup>中已有详述,本文不再赘述.

### 6.1 背反对吸收薄膜的拟合的影响

背反的相位信息丢失,但其强度信息依然保留下来.反映在椭偏参数上,即 $\Delta$ 数据不受影响,但 $\psi$ 数据上叠加了背反的强度信息.图6所示为椭偏测量的载玻片上a-Si薄膜的 $\psi$ 数据(入射角为 $65^\circ$ ,  $70^\circ$ ,  $75^\circ$ ).从图中可以看出在300 nm波段以上,未消除背反的样品的 $\psi$ 数据明显高于消除背反后的 $\psi$ 数据.背反难以通过数学方法进行校正,它的存在会极大的增加拟合难度.通过SE+T法对含有背反的a-Si薄膜进行拟合.发现拟合值与测量值出现了较大的偏差,而最终拟合得到的厚度也由原本的25.1 nm(该厚度为消除背反后采用SE+T法得到,详见6.3节)变为8.51 nm,而其光学常数也极大的偏离了消除背反后拟合得到的值.

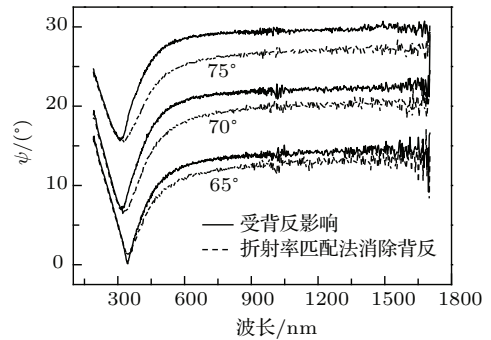


图6 采用折射率匹配法消除背反及含有背反的a-Si薄膜(衬底为载玻片,膜厚25.1 nm)的 $\psi$ 数据

Fig. 6. Ellipsometric  $\psi$  data of a-Si thin film acquired on a glass slide substrate with and without index matching technique used.

### 6.2 SE+T法拟合得到石英衬底上DLC薄膜的厚度和光学常数

前面我们已经通过逐点拟合 $T_0$ 得到衬底消光系数 $k_s$ .衬底的折射率 $n_s$ 则是通过拟合 $\psi$ 得到.衬底的 $\psi$ 数据对衬底的折射率灵敏,而其 $\Delta$ 数据主要对衬底上薄膜层、过渡层或粗糙层的厚度和光学性质敏感.众所周知,椭偏仪在拟合衬底的椭偏参数( $\psi$ ,  $\Delta$ 均作为拟合参数)的过程中,也可以得出衬底的消光系数(以下简称 $k_{ss}$ ).而 $k_{ss}$ 反应的是衬底表面粗糙层或过渡层的消光系数.为检验消光系数的准确性对SE+T法拟合的影响,拟合时仅改

变衬底层光学常数中的消光系数 ( $k_s, k_{ss}$ ), 其他保持不变. 本文采用的石英衬底在 260 nm 波长点以上全透, 因此其光学常数的差异表现在 260 nm 以下. 采用  $n_s, k_s$  作为衬底层的光学常数时, SE+T 法最终的拟合结果为  $d_f = 11.47$  nm,  $MSE = 1.17$ . 而将  $k_s$  替换为  $k_{ss}$ , 拟合得到的结果为  $d_f = 12.44$  nm,  $MSE = 4.30$ . 消光系数的改变, 在  $\psi, \Delta$  的拟合结果中看不到明显的差异. 图 7(a) 为采用  $n_s, k_s$  作为衬底层的光学常数时,  $T_0$  的拟合情况. 可以发现透过率的测量值与拟合值符合的非常好. 图 7(b) 为采用  $n_s, k_{ss}$  作为衬底层的光学常数时,  $T_0$  的拟合情况. 拟合值与测量值在 260 nm 波长点以下出现了较大的差异.

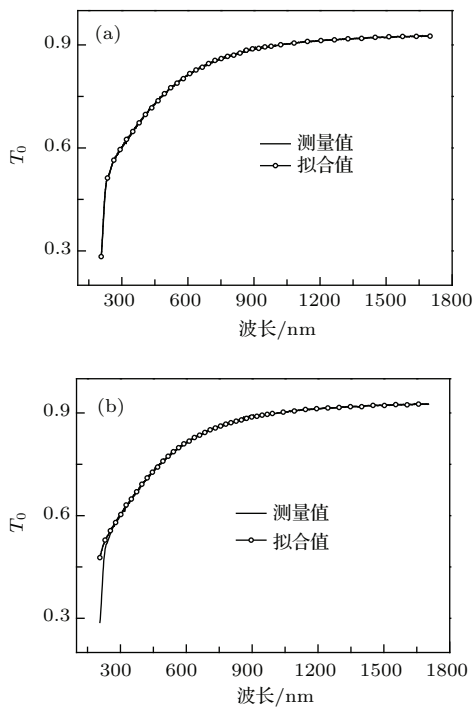


图 7 DLC 薄膜  $T_0$  的拟合情况 (a) 衬底层为  $n_s$  和  $k_s$ ; (b) 衬底层为  $n_s$  和  $k_{ss}$

Fig. 7. Model fit of the  $T_0$  to measured data of DLC film: (a) the substrate's optical constants are  $n_s$  and  $k_s$ ; (b) the substrate's optical constants are  $n_s$  and  $k_{ss}$ .

图 7(b) 中  $T_0$  的拟合值与测量值的差异是由于衬底的消光系数未正确给出而致. 由图 5 可知, 当衬底的厚度较厚时, 因测量光通过衬底时的光程较长, 即使存在  $10^{-5}$  或者更低量级的消光系数, 反映在其透过率的变化上也是明显的. 因此, 当涉及到样品的透射数据的拟合分析时, 衬底本身的消光系数需要与薄膜的消光系数区分开, 即需要准确给出所用衬底的消光系数 (而消光系数的计算涉及到折射率, 因此折射率的准确给出也尤为重要).

在 260 nm 波段以上, 石英玻璃是透明的 (消光系数为 0). 因此透过率的拟合值与测量值均符合的较好.

采用  $k_s$  或  $k_{ss}$  作为衬底层消光系数时, 虽然仅在 200—260 nm 波段出现差异, 但得到的 DLC 薄膜的厚度仍然相差约 1 nm. 图 8 给出了两者光学常数差异. 从图中可以看出, 采用  $k_{ss}$  作为衬底层消光系数时, 得到的折射率偏低, 而且 200—260 nm 波段范围出现了一定的波动. 载玻片和盖玻片均是浮法玻璃, 其光学常数的差异, 几乎覆盖整个拟合区间. 因此, 准确给出衬底的光学常数对 SE+T 法的拟合尤为重要.

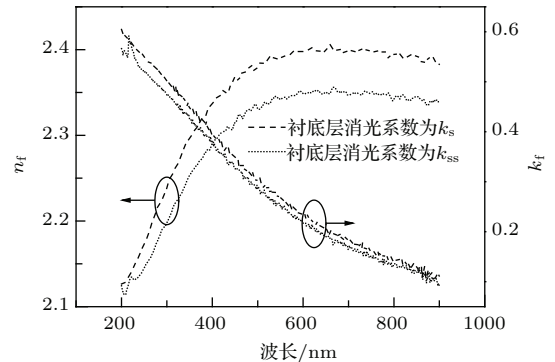


图 8  $k_s, k_{ss}$  分别作为衬底层消光系数时, SE+T 法拟合得到的 DLC 薄膜的光学常数

Fig. 8. The optical constants of the DLC film fitted by SE+T method, as the substrate's extinction coefficient are  $k_s$  and  $k_{ss}$  respectively.

### 6.3 SE+T 法拟合得到载玻片上 a-Si 薄膜的厚度和光学常数

本文采用的载玻片属于浮法玻璃, 在 500—1500 nm 波段均存在吸收. 其厚度为 1.05 mm, 即使存在  $10^{-5}$  或者更低量级的消光系数的差异, 反映在其透过率的变化上也是明显的. 采用 SE+T 法对载玻片上 a-Si 薄膜进行拟合. 最终的拟合结果为  $d_f = 25.1$  nm, 粗糙层厚度  $d_s = 0.82$  nm,  $MSE=1.06$ . 图 9(a)—(c) 为其拟合结果. 从图中可以看出, 当背反被有效消除、衬底光学常数被准确给出后, 光学模型计算的值与测量的值均符合的非常好.

图 10 为采用 SE+T 法拟合得到的载玻片上厚度为 25.1 nm, 41.0 nm 和盖玻片上厚度为 45.2 nm 的 a-Si 薄膜的光学常数. 从图中可以看出, a-Si 薄膜的折射率有随厚度增加而增大的趋势, 而厚度为 41.0 nm 和 45.2 nm 的 a-Si 薄膜, 由于其厚度较为

接近, 因而其折射率在可见光和红外光谱区近似相等, 仅在紫外区出现了差别. 本文所采用的 a-Si 薄膜都是在室温下采用 PVD 设备制备的, 折射率较

以往文献(如 Palic 光学手册)中的相关测试结果偏低主要是受工艺的影响, 而温度较低、扩散不均匀应该是主要原因.

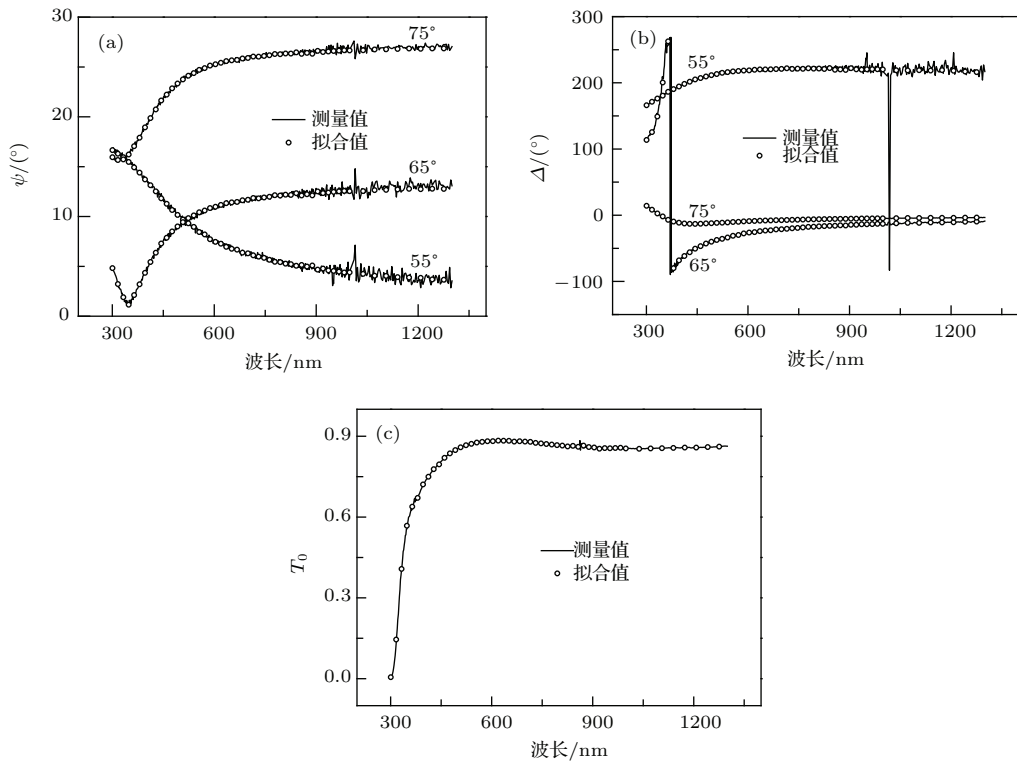


图9 载玻片上 a-Si 薄膜  $\psi$ ,  $\Delta$  以及  $T_0$  的拟合情况

Fig. 9. Model fit of the  $\psi$ ,  $\Delta$  and  $T_0$  to measured data of a-Si film coated on a glass slide.

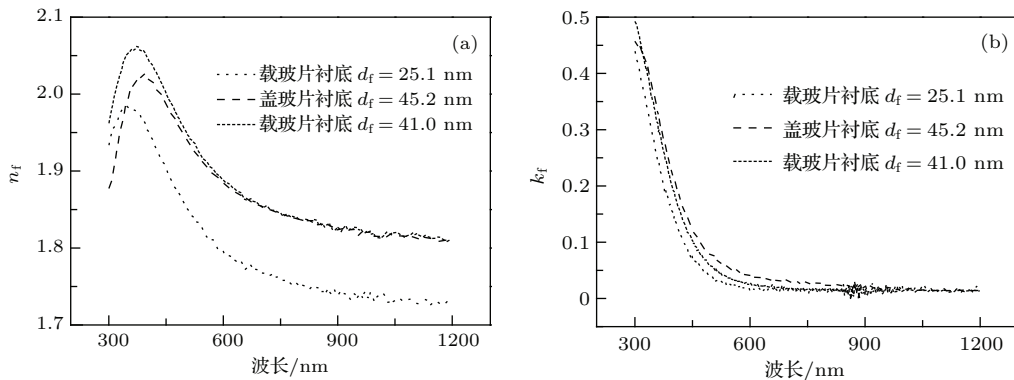


图10 SE+T 法拟合得到的 a-Si 薄膜的光学常数 (a) 折射率; (b) 消光系数

Fig. 10. The optical constants of the a-Si film fitted by SE+T method: (a) refractive index; (b) extinction coefficient.

## 7 结 论

双面抛光的透明衬底, 其背面反射光的相位信息丢失, 它的存在会极大的增大拟合难度. 本文采用折射率匹配法(匹配材料为磨砂半透明胶带)有效消除了载玻片、盖玻片(厚仅 0.15 mm) 及石英玻

璃的背面反射光. 结果显示折射率匹配法能够有效消除折射率在 1.43—1.64、波长范围为 190—1700 nm 波段透明衬底的背面反射光. 透明衬底光学常数(特别是消光系数  $k$ ) 的准确得到, 是采用 SE+T 法拟合得到吸收薄膜厚度及光学常数的关键. 因此, 本文通过拟合椭圆偏参数  $\psi$  测量得到以上衬底的折射率, 而其消光系数通过拟合垂直入射时的透过



率  $T_0$  得到. 对沉积在石英玻璃上的 DLC 薄膜以及载玻片、盖玻片上的 a-Si 薄膜, 采用 SE+T 法拟合得到其厚度和光学常数. 拟合结果显示, 光学模型拟合出的值与设备测量的以上薄膜  $\psi$ ,  $\Delta$ ,  $T$  均符合的非常好.

## 参考文献

- [1] Swanepoel R 1983 *J. Phys. E: Sci. Instrum.* **16** 1214
- [2] Swanepoel R 1984 *J. Phys. E: Sci. Instrum.* **17** 896
- [3] Hilfiker J N, Singh N, Tiwald T, Convey D, Smith S M, Baker J H, Tompkins H G 2008 *Thin Solid Films* **516** 7979
- [4] McGahan W A, Johs B, Woollam J A 1993 *Thin Solid Films* **234** 443
- [5] Jellison Jr G E, Merkulov V I, Poretzky A A, Geohegan D B, Eres G, Lowndes D H, Caughman J B 2000 *Thin Solid Films* **377** 68
- [6] Jellison Jr G E, Modine F A 1996 *Appl. Phys. Lett.* **69** 371
- [7] He J, Li W, Xu R, Guo A R, Qi Q C, Jiang Y D 2008 *Acta. Phys. Sin.* **57** 7114 (in Chinese) [何剑, 李伟, 徐睿, 郭安然, 祁康成, 蒋亚东 2008 物理学报 **57** 7114]
- [8] Ma J M, Liang Y, Gao X Y, Chen C, Zhao M K, Lu J X 2012 *Acta. Phys. Sin.* **61** 056106 (in Chinese) [马姣民, 梁艳, 郜小勇, 陈超, 赵孟珂, 卢景霄 2012 物理学报 **61** 056106]
- [9] Franta D, Ohlídal I, Buršíková V, Zajíčková L 2004 *Thin Solid Films* **455** 393
- [10] Tompkins H G, Tasic S 2000 *J. Vac. Sci. Technol. A* **18** 946
- [11] Zhou Y, Wu G S, Dai W, Li H B, Wang A Y 2010 *Acta Phys. Sin.* **59** 2356 (in Chinese) [周毅, 吴国松, 代伟, 李洪波, 汪爱英 2010 物理学报 **59** 2356]
- [12] Synowicki R A, Johs B D, Martin A C 2011 *Thin Solid Films* **519** 2907
- [13] Fujiwara H 2007 *Spectroscopic ellipsometry: principles and applications* (Chichester: John Wiley & Sons) p138
- [14] Forcht K, Gombert A, Joerger R, Köhl M 1997 *Thin Solid Films* **302** 43
- [15] Hayton D J, Jenkins T E 2004 *Meas. Sci. Technol.* **15** N17
- [16] Synowicki R A 2008 *Phys. Status Solidi C* **5** 1085
- [17] Kitamura R, Pilon L, Jonasz M 2007 *Appl. Optics* **46** 8118
- [18] Bruggeman D A G 1935 *Ann. Phys.-Berlin* **24** 636
- [19] Fujiwara H, Koh J, Rovira P I, Collins R W 2000 *Phys. Rev. B* **61** 10832
- [20] Colombin L, Jelli A, Riga J, Pireaux J J, Verbist J 1977 *J. Non-Cryst. Solids* **24** 253
- [21] Dugnoille B, Virlet O 1994 *Appl. Optics* **33** 5853
- [22] Zhao J M, Yang P 2012 *Microsystem Technologies* **18** 1455

# Accurate determination of thickness values and optical constants of absorbing thin films on opaque substrates with spectroscopic ellipsometry

Li Jiang<sup>1)2)</sup> Tang Jing-You<sup>2)</sup> Pei Wang<sup>1)</sup> Wei Xian-Hua<sup>2)</sup> Huang Feng<sup>1)†</sup>

1) (*Key Laboratory of Marine Materials and Related Technologies, Zhejiang Key Laboratory of Marine Materials and Protective Technologies, Ningbo Institute of Materials Technology and Engineering, Chinese Academy of Sciences, Ningbo 315201, China*)

2) (*School of Materials Science and Engineering, Southwest University of Science and Technology, Mianyang 621010, China*)

( Received 21 September 2014; revised manuscript received 14 January 2015 )

## Abstract

The determination of the optical constants of absorbing films, particularly on opaque substrates, is a difficult problem when solely using spectroscopic ellipsometry. First, unwanted backside reflections are incoherent with the desired reflection from the front side, which makes the fitting of optical constants difficult. Second, the optical constants of substrate must be carefully characterized in advance, as any small absorption in the substrate would be mixed into the film's overall optical constants. Third, thickness and optical constants are strongly correlated with each other, which may prevent a unique solution for absorbing films. For the above reasons, quartz, glass slide, cover glass and float glass substrates are studied. Backside reflections of the substrates are suppressed by index matching technique. The results show that the simple technique works well for substrate materials with refractive index in a range from 1.43 to 1.64, including materials such as fused silica, float glass, etc. in a spectral range from 190 nm to 1700 nm. The refractive index and extinction coefficient of the substrate are fitted by ellipsometric  $\psi$  data and the normal spectral transmittance  $T_0$ . The results are consistent with the literature reported. Finally, a Combined ellipsometry and transmission approach is used to determine the thickness values and optical constants of the diamond-like carbon (DLC) film coated on the quartz and the amorphous silicon (a-Si) film coated on the glass slide and cover glass accurately.

**Keywords:** backside reflections, index matching techniques, absorbing films, optical constants

**PACS:** 07.60.Fs, 78.20.Ci, 78.20.-e

**DOI:** 10.7498/aps.64.110702

---

† Corresponding author. E-mail: [huangfeng@nimte.ac.cn](mailto:huangfeng@nimte.ac.cn)