

各向异性择优取向薄膜的椭偏光谱术理论^{*}

刘毅^{1,2}, 莫党¹, 张曰理¹, 何振辉¹

(1. 中山大学光电材料与技术国家重点实验室, 广东 广州 510275;

2. 深圳大学师范学院, 广东 深圳 518060)

摘要: 推导出一组具有特殊择优取向的各向异性薄膜的椭偏公式, 并以光轴沿着薄膜表面及光轴垂直薄膜表面的各向异性薄膜为例, 分别在透明和吸收波段进行模拟计算, 得到了椭偏谱的基本特征。

关键词: 椭偏光谱; 薄膜; 各向异性

中图分类号: O484.5; O433.1 **文献标识码:** A **文章编号:** 0529-6579 (2004) 06-0085-04

近年来迅速发展的功能薄膜的研究与开发, 开辟了许多光电器件、电子信息、计算机储存等领域的新应用。其中, 各种具有择优取向的、各向异性的薄膜, 也成为广受关注的研究对象。要制备良好的器件, 控制薄膜的择优取向是非常重要的。这时, 光学检测是一种有效的工艺测定与监控的手段。

椭偏光谱术是一种适合于测量薄膜的折射率与厚度的光学技术^[1,2]。传统椭偏仪 (包括商品椭偏仪) 是基于测定反射光束 s 波的偏振态与 p 波的偏振态的各自变化的。这类仪器对测量各向异性薄膜出现了问题。因此有研究者发展出普适化椭偏术 (generalized ellipsometry)^[3]。但是这种方法比较复杂, 不易采用商品椭偏仪来进行测量。

关于各向异性薄膜的椭偏光谱公式, 其中光轴垂直薄膜表面的情况, 已有文献给出^[1,4]。光轴沿着薄膜表面情况, 文献中没有具体的公式可直接使用。本文发展一种用传统椭偏术测量具有特殊的择优取向薄膜的方法^[5]。我们从光轴沿着表面的体样品 (不是薄膜) 情况的普遍式出发^[1,6], 进行公式推导, 由体样品情况推广到薄膜—衬底情况, 得到光轴垂直薄膜表面和光轴沿着薄膜表面某些特殊情况的椭偏公式。这样, 采用传统椭偏仪 (包括商品椭偏仪), 并利用在样品台上旋转薄膜样品的方法, 进行对择优取向薄膜的椭偏光谱测量, 然后使用本文的椭偏公式, 进行解谱分析, 就可得到各向异性复数折射率值以及膜厚值。本文给出本方法的理论, 即公式推导, 以及数值模拟计算。

1 各向异性膜的椭偏光谱理论和公式

传统椭偏术是基于测定反射光束 s 波的偏振态与 p 波的偏振态的各自变化。这时, 椭偏参数 Ψ 和 Δ 定义为^[1,2]

$$\tan \Psi \exp(i\Delta) = R_p/R_s \quad (1)$$

式中, R_p 与 R_s 分别是 p 波的与 s 波的反射系数。

但是, 对于任意光轴取向的各向异性膜, 其椭偏光谱理论比各向同性介质情况复杂。这时, 反射光束 s 偏振波不但与入射光束 s 偏振波有关, 还与入射光束 p 偏振波有关; 反射光束 p 偏振波也与入射光束 s 偏振波有关。于是, 反射系数用矩阵描述, 它满足下式:

$$\begin{bmatrix} E_{rp} \\ E_{rs} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} R_{pp} & R_{ps} \\ R_{sp} & R_{ss} \end{bmatrix} \cdot \begin{bmatrix} E_p \\ E_s \end{bmatrix} \quad (2)$$

这里, E_p 、 E_s 、 E_{rp} 和 E_{rs} 分别为入射光束 p 波、 s 波与反射光束 p 波、 s 波的电场强度。这时, 反射系数矩阵有四个分量 R_{pp} 、 R_{ps} 、 R_{sp} 和 R_{ss} , 传统椭偏术的公式 (1) 不能使用。

对一些特殊的光轴取向的薄膜样品情况, 反射矩阵的交叉分量 R_{sp} 和 R_{ps} 为 0, 反射矩阵为对角矩阵, 于是可使用传统椭偏术来进行测量, 按各向异性膜椭偏光谱理论来解谱分析, 得到各向异性膜的折射率与消光系数。下面我们分析这些特殊光轴取向的薄膜样品情况, 并推导相应的椭偏光谱公式。

1.1 特殊的光轴取向的薄膜样品情况

可使用传统椭偏术来进行测量的特殊光轴取向的薄膜, 是光轴垂直薄膜表面、或是光轴沿着薄膜

* 收稿日期: 2004—03—18

基金项目: 国家自然科学基金资助项目 (50372085); 广东省自然科学基金资助项目 (021696)

作者简介: 刘毅 (1975 年生), 女, 博士生, 讲师; 通讯联系人: 何振辉, 博士生导师; E-mail: stshzh@zsu.edu.cn

表面并且在入射面上、或是光轴沿薄膜表面并垂直入射面。即光轴沿着 z 轴、 y 轴、或 x 轴, 如图 1 所示, 此时入射面为 yoz 平面。

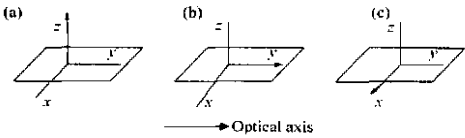


图 1 光轴与薄膜表面位置关系示意图
Fig. 1 Schematic diagram of three kinds of system with different directions of the optical axis

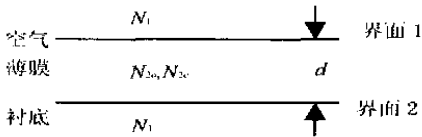


图 2 单层薄膜—衬底系统模型示意图
Fig. 2 Schematic diagram of the model of single layer film on substrate

1.2 光轴垂直薄膜表面的椭偏光谱公式

光轴垂直薄膜表面的薄膜如图 1 (a) 所示的系统, 其椭偏光谱公式中的量用下标 A 表示。图 2 是单层薄膜—衬底的示意图。其椭偏光谱公式为^[1,4]:

$$r_{A1p} = \frac{N_{2o}N_{2e}\cos\varphi_1 - N_1(N_{2e}^2 - N_1^2\sin^2\varphi_1)^{1/2}}{N_{2o}N_{2e}\cos\varphi_1 + N_1(N_{2e}^2 - N_1^2\sin^2\varphi_1)^{1/2}} \tag{3}$$

$$r_{A1s} = \frac{N_1\cos\varphi_1 - (N_{2o}^2 - N_1^2\sin^2\varphi_1)^{1/2}}{N_1\cos\varphi_1 + (N_{2o}^2 - N_1^2\sin^2\varphi_1)^{1/2}} \tag{4}$$

$$r_{A2p} = \frac{N_3^2(N_{2e}^2 - N_1^2\sin^2\varphi_1)^{1/2} - N_{2o}N_{2e}(N_3^2 - N_1^2\sin^2\varphi_1)^{1/2}}{N_3^2(N_{2e}^2 - N_1^2\sin^2\varphi_1)^{1/2} + N_{2o}N_{2e}(N_3^2 - N_1^2\sin^2\varphi_1)^{1/2}} \tag{5}$$

$$r_{A2s} = \frac{(N_{2o}^2 - N_1^2\sin^2\varphi_1)^{1/2} - (N_3^2 - N_1^2\sin^2\varphi_1)^{1/2}}{(N_{2o}^2 - N_1^2\sin^2\varphi_1)^{1/2} + (N_3^2 - N_1^2\sin^2\varphi_1)^{1/2}} \tag{6}$$

$$\delta_p = \frac{2\pi d}{\lambda} \frac{N_{2o}}{N_{2e}} (N_{2e}^2 - N_1^2\sin^2\varphi_1)^{1/2} \tag{7}$$

$$\delta_s = \frac{2\pi d}{\lambda} (N_{2o}^2 - N_1^2\sin^2\varphi_1)^{1/2} \tag{8}$$

$$R_{Ap} = \frac{r_{A1p} + r_{A2p}\exp(-2i\delta_p)}{1 + r_{A1p}r_{A2p}\exp(-2i\delta_p)} \tag{9}$$

$$R_{As} = \frac{r_{A1s} + r_{A2s}\exp(-2i\delta_s)}{1 + r_{A1s}r_{A2s}\exp(-2i\delta_s)} \tag{10}$$

$$\tan\Psi_A\exp(i\Delta_A) = \frac{R_p}{R_s} \tag{11}$$

注意这里所用的符号按本文规定, 与文献 [1, 4] 有所不同。这里, r 为界面的反射系数, R 为总反射系数, δ 为复相位角, 下标 A 表示 A 系统, 下标 1 和 2 表示发生反射或折射的界面, 下标 p 和 s 分别表示 p 波和 s 波。以下标记与此类同。

1.3 光轴沿着薄膜表面的椭偏光谱公式

光轴沿着薄膜表面情况, 文献中没有具体的公式可直接使用。光轴沿着表面的体样品情况的反射系数公式为 (其中有些量的符号已按本文规定更改)^[1]:

$$r_{ss} = \frac{t_1p_1 + t_2p_2}{t_1 + t_2} \tag{12}$$

$$r_{sp} = \frac{t_1t_2(p_2 - p_1)}{t_1 + t_2} \tag{13}$$

$$r_{ps} = \frac{p_4 - p_3}{t_1 + t_2} \tag{14}$$

$$r_{pp} = \frac{t_1p_4 + t_2p_3}{t_1 + t_2} \tag{15}$$

其中,

$$t_1 = J(N_1\sin^2\varphi_1 + J\cos\varphi_1)\tan\omega \tag{16}$$

$$t_2 = \frac{N_{2o}\tan\omega(I + N_1N_{2o}\cos\varphi_1)}{IN_{2o}\cos\varphi_1 + N_1J^2} \tag{17}$$

$$p_1 = \frac{N_1\cos\varphi_1 - J}{N_1\cos\varphi_1 + J} \tag{18}$$

$$p_2 = \frac{N_1N_{2o}\cos\varphi_1 - I}{N_1N_{2o}\cos\varphi_1 + I} \tag{19}$$

$$p_3 = \frac{N_{2o}^2\cos\varphi_1 - N_1J}{N_{2o}^2\cos\varphi_1 + N_1J} \tag{20}$$

$$p_4 = \frac{I^2N_{2o}\cos\varphi_1 - N_1J^2I}{I^2N_{2o}\cos\varphi_1 + N_1J^2I} \tag{21}$$

其中,

$$I^2 = N_{2e}^2N_{2o}^2 - N_1^2\sin^2\varphi_1(N_{2e}^2\cos^2\omega + N_{2o}^2\sin^2\omega) \tag{22}$$

$$J^2 = N_{2o}^2 - N_1^2\sin^2\varphi_1 \tag{23}$$

对于图 1 (B) 的系统, $\omega = 0$, 由式 (16) 和式 (17) 得 $t_2 = 0$, $t_1 \rightarrow \infty$, 根据式 (12) — 式 (15) 得 $r_{pp} = p_4$, $r_{ss} = p_1$, $r_{ps} = r_{sp} = 0$ 。

通过式 (18)、式 (21)、式 (22) 以及式 (23) 的运算, 得到

$$r_{B1p} = \frac{N_{2o}N_{2e}\cos\varphi_1 - N_1(N_{2o}^2 - N_1^2\sin^2\varphi_1)^{1/2}}{N_{2o}N_{2e}\cos\varphi_1 + N_1(N_{2o}^2 - N_1^2\sin^2\varphi_1)^{1/2}} \tag{24}$$

$$r_{B1s} = \frac{N_1\cos\varphi_1 - (N_{2o}^2 - N_1^2\sin^2\varphi_1)^{1/2}}{N_1\cos\varphi_1 + (N_{2o}^2 - N_1^2\sin^2\varphi_1)^{1/2}} \tag{25}$$

我们通过与上述运算相似的推导, 得到第 2 个交界面的反射系数公式:

$$r_{B2p} = \frac{N_3^2(N_{2o}^2 - N_1^2\sin^2\varphi_1)^{1/2} - N_{2o}N_{2e}(N_3^2 - N_1^2\sin^2\varphi_1)^{1/2}}{N_3^2(N_{2o}^2 - N_1^2\sin^2\varphi_1)^{1/2} + N_{2o}N_{2e}(N_3^2 - N_1^2\sin^2\varphi_1)^{1/2}} \tag{26}$$

$$r_{B2s} = \frac{(N_{2o}^2 - N_1^2\sin^2\varphi_1)^{1/2} - (N_3^2 - N_1^2\sin^2\varphi_1)^{1/2}}{(N_{2o}^2 - N_1^2\sin^2\varphi_1)^{1/2} + (N_3^2 - N_1^2\sin^2\varphi_1)^{1/2}} \tag{27}$$

与式 (7) 和式 (8) 相类似, 可得相位差 δ 公式:

$$\delta_p = \frac{2\pi}{\lambda} d \frac{N_{2e}}{N_{2o}} (N_{2o}^2 - N_1^2 \sin^2 \varphi_1)^{1/2} \tag{28}$$

$$\delta_s = \frac{2\pi}{\lambda} d (N_{2o}^2 - N_1^2 \sin^2 \varphi_1)^{1/2} \tag{29}$$

通过下式

$$R_{Bp} = \frac{r_{B1p} + r_{B2p} \exp(-2i \delta_p)}{1 + r_{B1p} r_{B2p} \exp(-2i \delta_p)} \tag{30}$$

$$R_{Bs} = \frac{r_{B1s} + r_{B2s} \exp(-2i \delta_s)}{1 + r_{B1s} r_{B2s} \exp(-2i \delta_s)} \tag{31}$$

$$\tan \Psi_B \exp(i \Delta_B) = \frac{R_{Bp}}{R_{Bs}} \tag{32}$$

可得 (B) 系统的椭偏参数。
对于图 1 (C) 系统, $\omega = \pi/2$, 由式(16) 和式(17) 得 $t_1 = 0, t_2 \rightarrow \infty$, 根据式(12) 一式(15) 得 $r_{pp} = p_3, r_{ss} = p_2, r_{ps} = r_{sp} = 0$ 。

通过式(19)、式(20)、式(22) 以及式(23) 的运算, 得到

$$r_{C1p} = \frac{N_{2o} \cos \varphi_1 - N_1 (N_{2o}^2 - N_1^2 \sin^2 \varphi_1)^{1/2}}{N_{2o} \cos \varphi_1 + N_1 (N_{2o}^2 - N_1^2 \sin^2 \varphi_1)^{1/2}} \tag{33}$$

$$r_{C1s} = \frac{N_1 \cos \varphi_1 - (N_{2e}^2 - N_1^2 \sin^2 \varphi_1)^{1/2}}{N_1 \cos \varphi_1 + (N_{2e}^2 - N_1^2 \sin^2 \varphi_1)^{1/2}} \tag{34}$$

与上述运算相似, 得到第 2 个交界面的反射系数以及相位差 δ 公式:

$$r_{C2p} = \frac{N_3^2 (N_{2o}^2 - N_1^2 \sin^2 \varphi_1)^{1/2} - N_{2o}^2 (N_3^2 - N_1^2 \sin^2 \varphi_1)^{1/2}}{N_3^2 (N_{2o}^2 - N_1^2 \sin^2 \varphi_1)^{1/2} + N_{2o}^2 (N_3^2 - N_1^2 \sin^2 \varphi_1)^{1/2}} \tag{35}$$

$$r_{C2s} = \frac{N_{2e}^2 - N_1^2 \sin^2 \varphi_1)^{1/2} - (N_3^2 - N_1^2 \sin^2 \varphi_1)^{1/2}}{N_{2e}^2 - N_1^2 \sin^2 \varphi_1)^{1/2} + (N_3^2 - N_1^2 \sin^2 \varphi_1)^{1/2}} \tag{36}$$

$$\delta_p = \frac{2\pi}{\lambda} d (N_{2o}^2 - N_1^2 \sin^2 \varphi_1)^{1/2} \tag{37}$$

$$\delta_s = \frac{2\pi}{\lambda} d (N_{2e}^2 - N_1^2 \sin^2 \varphi_1)^{1/2} \tag{38}$$

$$R_p = \frac{r_{C1p} + r_{C2p} \exp(-2i \delta_p)}{1 + r_{C1p} r_{C2p} \exp(-2i \delta_p)} \tag{39}$$

$$R_s = \frac{r_{C1s} + r_{C2s} \exp(-2i \delta_s)}{1 + r_{C1s} r_{C2s} \exp(-2i \delta_s)} \tag{40}$$

$$\tan \Psi_C \exp(i \Delta_C) = \frac{R_p}{R_s} \tag{41}$$

通过式(39) – (41), 可得(C) 系统的椭偏参数。
在实际的椭偏光谱的解谱分析中, 运用上述的式(3) – (11)、式(24) – (41) 共 27 个公式进行最优化计算。

2 模拟计算结果

下面我们对一些各向异性薄膜的椭偏光谱进行模拟计算。
例 1 为采用在样品台上旋转光轴平行薄膜表面样品的方法, 得到图 1 (B) 和 (C) 两种系统, 其

入射面均为 yOz 平面, 令 $N_o - N_e = 0.1$, 计算出在透明波段的椭偏光谱结果, 由图 3 表示。图中椭偏参数谱有如下特点: ①B 系统和 C 系统的椭偏参数发生了明显偏移; ②对于 $\tan \Psi$, C 系统向高能方向偏移, 且峰高也略有变化; ③对于 $\cos \Delta$, C 系统则向低能端偏移, 振荡幅度无变化。总的说来, 椭偏参数呈现典型的各向异性。

例 2 为比较光轴垂直薄膜表面的样品与光轴平行于薄膜表面的样品, 令 $N_o - N_e = 1.0$, 分别对应 (A)、(B) 和 (C) 系统的在吸收波段的椭偏光谱结果, 由图 4 表示。与透明波段不同, 在吸收波段的椭偏参数谱表现出如下特点: ①椭偏参数发生对应于椭偏参数数值的高低变化; ②A 系统与 B 系统的椭偏参数值变化很小基本一致, 而 C 系统则变化较大, 表明 x 方向光学常数对椭偏参数的影响更大, 即光轴垂直入射面对椭偏参数的影响更大; ③ $\cos \Delta$ 的变化 (> 0.19) 比 $\tan \Psi$ (< 0.02) 的变化要大的多, 表明在吸收波段, $\cos \Delta$ 比 $\tan \Psi$ 对材料的各向异性更敏感。

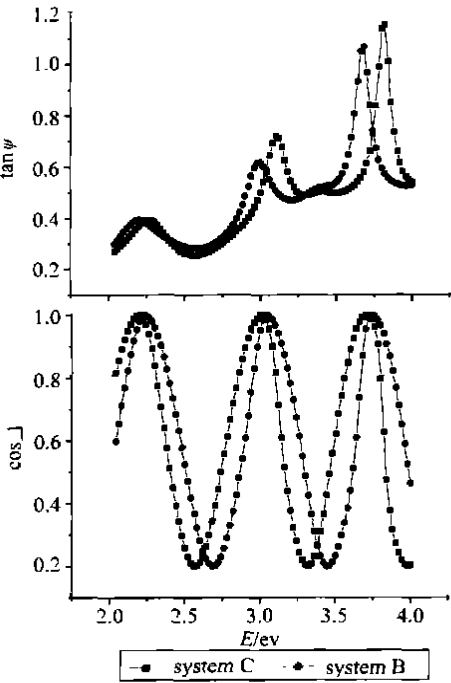


图 3 透明波段模拟计算椭偏参数谱
Fig. 3 Calculated ellipsometric spectra of B system and C system at transparent wave band

3 结 论

从模拟后的结果可以看到, 用该方法得到的椭偏参数谱表现出显著的各向异性, 可有效地区分各向异性薄膜, 并为利用传统椭偏仪测量分析具有特殊的择优取向各向异性薄膜的光学常数提供理论计

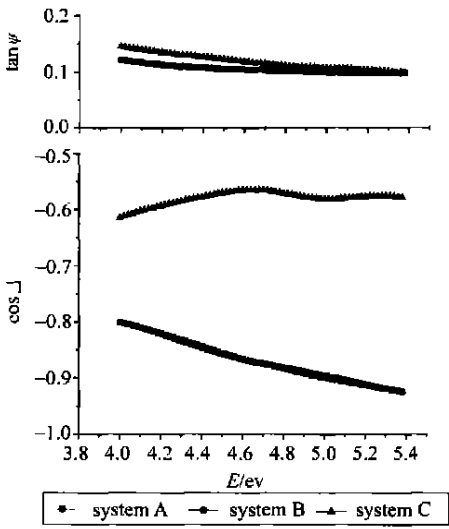


图 4 吸收波段模拟计算椭圆参数谱
Fig 4 Calculated ellipsometric spectra of A, B and C system at absorbed wave band

算工具。由于特殊择优取向薄膜多数为多晶薄膜, 因此其光学常数的各向异性效应比理论推导单晶薄膜效应弱, 也即多晶材料晶体实际的光学各向异性比采用本文方法分析测得的更强, 因此采用本文方法, 可以估算材料择优取向度。

参考文献:

[1] AZZAM R M A, BASHARA N M. Ellipsometry and polarized light[M] . Amsterdam: North Holland, 1977.
[2] 莫党. 固体光学[M] . 北京: 高等教育出版社, 1996: 135—148.
[3] SCHUBERT M. Generalized ellipsometry and complex optical systems[J] . Thin Solid Films, 1998, 313—314: 323—332.
[4] den ENGELSEN D. Ellipsometry of anisotropic films[J] . J Opt Soc Am, 1971, 61(11): 1460—1466.
[5] HU G D, WILSON I H, XU J B, et al. Structure control and characterization of SrBiTaO thin films by a modified annealing method[J] . Appl Phys Lett, 1999, 74(9): 1221—1223.
[6] SOSNOWSKI T P. Polarization mode filters for integrated optics[J] . Opt Commun, 1972, 4(6): 408—412.

Spectroscopic Ellipsometry Theory of Anisotropic Thin Films

LIU Yi^{1,2}, MO Dang¹, ZHANG Yue li¹, HE Zhen hui¹

(1. State Key Laboratory of Optoelectronic Materials and Technologies,
Sun Yat sen University, Guangzhou 510275, China;

2. Normal College, Shenzhen University, Shenzhen 518060, Guangdong, China)

Abstract: A set of ellipsometric equations on anisotropic thin films is deduced, and then ellipsometric spectra are calculated for special orientations with optical axis perpendicular or parallel to the surface. The characteristics of these spectra are analyzed.

Key words: spectroscopic ellipsometry; thin film; anisotropy