

高精度自动化椭圆偏振光谱仪^{*}

朱德瑞 赖天树 李秋俊 莫党

(中山大学物理学系, 广州 510275)

摘 要 报导了 486/80 计算机控制的自动化的转动检偏计式的光度法椭圆偏振光谱仪的设计和制造. 仪器主要由光学系统、机械转动控制系统和数据采集系统组成. 其频谱范围 200~900 nm, 入射角可在 5~85° 连续改变, 灵敏度达 $0.1 \mu\text{W}$ 光强, 有很高的精密度, 折射率 n 达 0.002 量级, 消光系数 k 达 0.003 量级, 准确度 n 达 0.001 量级, k 达 0.002 量级. 实验检验了仪器的精密度和准确度. 并讨论了其应用.

关键词 椭圆光谱仪, 光度法, 椭圆偏振光谱

分类号 O 432.2, O 436.3

椭圆偏振光谱 (简称椭偏谱) 仪是一种研究和测定薄膜表面及固体的光学性质的仪器. 它是利用菲涅尔反射折射定律, 通过分析光在样品上反射的偏振状态的变化, 得到物质的光学性质, 可以同时测量光频折射率的实部和虚部以及薄膜的厚度. 这种测量对物质表面结构和表面电子过程非常敏感, 精确度高, 但并不损伤样品本身, 属无损测量. 椭偏谱是在原来单一波长的椭偏计的基础上发展起来的. Jasperson 等^[1]首先报道了扫描波长调制的椭偏谱仪, 并用它测量了银膜的光学性质. Aspnes 等^[2]介绍了高精度扫描椭偏谱仪, 其工作波段为 225~720 nm. 此后椭偏谱技术不断发展, 并得到了广泛的应用^[3]. 莫党等^[4]在 70 年代就开始了这一工作, 经过不断改进, 1983 年制造出国内第一台较成熟椭偏谱仪 TPP-1 型^[5], 具有较宽的工作波段和精确度, 并成批生产, 发挥了重要的作用.

本文工作是在 TPP-1 型椭偏谱仪基础上, 对仪器进行自动化改造, 拓展工作波长, 提高波长分辨率, 以及测量灵敏度、精密度、准确度.

1 工作原理与实现

椭偏谱仪的基本理论是源于麦克斯韦方程的菲涅尔反射与折射原理. 测量的基本对象是光线的偏振态. 然后由这些光的偏振态结果, 由适当的模型 (模层结构) 加上菲涅尔的反射与折射定律可得出物质的光学性质. 前者是仪器硬件的任务, 后者是软件的任务.

1.1 基本原理

1.1.1 椭圆偏振光的一般描述 考虑沿 z 正方向传播的单色平面波, 其电矢量只有 x 分量

* 广东省高教厅资助项目

收稿日期: 1996-11-11 朱德瑞, 男, 30 岁, 博士

和 y 分量不为零. 在 xoy 平面里, (E_x, E_y) 的轨迹正是电矢量端点所描绘的曲线

$$E_x = E_1 \cos(kx - \omega t) \quad E_y = E_2 \cos(ky - \omega t + \delta) \quad (1)$$

式中 $kx - \omega t = k \cdot r$ 为随时间改变的相位因子. 消去 t 可得到一个椭圆方程

$$(E_x/E_1)^2 + (E_y/E_2)^2 - (E_x/E_1)(E_y/E_2) \cos \delta = \sin^2 \delta \quad (2)$$

其中 $\delta = \omega_2 - \omega_1$, $\delta = \omega_2 - \omega_1$ 为 x 分量与 y 分量的初相差. 我们选取迎着光线看, 电矢量端点顺时针方向画椭圆时, 为右旋偏振光. 当 $0 \leq \delta < \pi$ 时, (2) 式表示右旋的椭圆; 当 $\pi \leq \delta < 2\pi$ 时, (2) 式表示左旋的椭圆.

将 (1) 式用复数表示, 引入关系^[5]

$$\tan J e^{i\Delta} = E_y/E_x \quad (3)$$

上式为椭偏参数的定义. 这里 J, Δ ($0 \leq J < \pi/2$, $0 \leq \Delta < 2\pi$) 称为椭偏参数, 正是椭偏法测量中所要得到的最基本未知量.

1.1.2 椭偏参数的测量 由光度法理论, 对于椭圆偏振光, 光电倍增管检测到的光强信号为

$$I(\theta) = I_0 [1 + \cos 2i \cos 2(\theta - h)] = I_0 [1 + T \cos 2\theta + U \sin 2\theta] \quad (4)$$

其中 $T = \cos 2i \cos 2h$, $U = \cos 2i \sin 2h$ (5)

i 称为椭圆率, h 为椭圆方位角. 选取入射面所在的位置为角度的零点, 迎着光线看, 顺时针方向为角度的正方向, 起偏器偏振化方向固定在 45° . 对实验数据进行傅里叶分析, 得到

$$I(\theta) = f_0 + f_1 \cos 2\theta + f_2 \sin 2\theta \quad (6)$$

与 (4) 式比较, 式中 $T = f_1/f_0$, $U = f_2/f_0$. 由式 (2), (3), (5) 和椭圆率及椭圆方位角的定义^[6], 我们有

$$T = \cos 2J, \quad U = \sin 2J \cos \Delta \quad (7)$$

由此可解出椭偏参数,

$$\cos \Delta = U / \sqrt{1 - T^2}, \quad \tan J = \sqrt{(1 + T) / (1 - T)} \quad (8)$$

这里, 椭偏参数在范围 $0 \leq J < \pi/2$, $0 \leq \Delta < 2\pi$ 取值.

1.2 硬件设计与实现

广义而言, 不同条件下 (不同波长, 不同入射角等) 的反射光偏振态即是椭偏谱. 椭偏谱仪按工作方式可分为消光型和光度型两大类. 自动化椭偏谱仪与 TPP-1 型一样, 属光度型的, 工作时转动检偏仪, 测量光强与检偏仪的方位角的 $I-\theta$ 关系式 (4), 由实验配置条件, 求得椭偏参数 ($\tan J(\lambda)$, $\cos \Delta(\lambda)$) 谱. 系统的基本配置, 入射面为偏振化方向的零度角, 迎着光线看, 顺时针方向为角度的正方向, 反时针方向为角度的负方向, 起偏器偏振化方向固定在 45° . 实验装置如图 1 所示, 包含光学系统、机械系统和电学系统. 自动化椭偏谱仪有以下几点改进. ① 光源氙灯安放在一二维调整架上, 有利于光路的准直、聚焦的调节, 可产生准平面波. ② 采用分辨率较高和工作波段较宽的光栅单色仪. 波长极限分辨率达到 0.1 nm , 扫描范围最宽可达 $190 \sim 900 \text{ nm}$ (更换光栅可达中远红外). 通过与计算机接口, 实现了自动控制波长的改变. ③ 选用消光比更高, 工作波长可到紫外的泰勒棱镜作为起偏和检偏器元件. 消光比达 $\times 10^{-5}$, 工作波长 $200 \sim 3500 \text{ nm}$. ④ 用涡轮蜗杆传动将步进马达与棱镜耦合起来, 并与计算机接口. 棱镜转动的角度最大误差小于 0.02° . ⑤ 样品台可五维微调, 适用不同大小表面积, 不同厚度的样品材料, 方便光路调节. 提高了入射角的测量精确度, 达到 0.05° . ⑥ 入射角可在 $5^\circ \sim 85^\circ$ 连续改变, 角度分辨率小于 0.02° . ⑦ 采用光电倍增管探测, 其响应波段 $190 \sim 900 \text{ nm}$. 电信号经锁相放大技术处理, 提高了信噪比, 增加了仪器的灵敏度, 同时抑制了

背景光线的影响, 不再需要在全暗的条件下工作. 模拟量信号经模数转换后由计算机采集并处理.

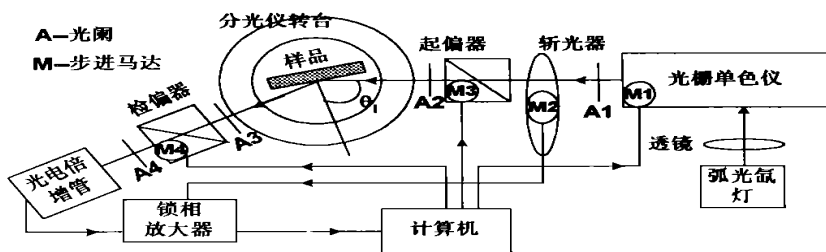


图 1 自动化转动检偏计式椭圆偏振光谱仪的光学、控制和数据采集系统示意图

Fig. 1 Schematic diagram of the optical, controlling and data acquisition system of the automatic rotating-analyzer ellipsometer

1.3 软件设计与实现

根据椭圆偏振仪硬件的需要, 软件分为两大部分. 第一部分是驱动谱仪工作的测量程序. 程序的目的是按工作人员的要求和实验的需要, 控制谱仪各部分协调动作, 并将数据采集回计算机, 同时完成简单的数据处理, 得到的 $(\tan J(\lambda), \cos \Delta(\lambda))$ 谱结果, 并以文件形式存储起来. 主要有实验调整和自动测量两个功能模块.

第二部分是进行数据分析的解谱程序, 即按适当的模型(膜层结构)和算法, 由 $(\tan J(\lambda), \cos \Delta(\lambda))$ 谱数据得到 $(n(\lambda), k(\lambda))$ 或 $\tilde{X}(\lambda), \tilde{Y}(\lambda)$ 等谱以及膜层厚度的结果. 在优化处理时, 选用对称变化率的目标函数. 程序分无膜, 单层膜, 二层膜, 三层膜以至多层膜等膜层结构具有独立的解谱程序. 经过实际运行, 程序具有较强的解谱能力. 关于这一解谱程序更详细的讨论将另文发表.

软件主要由 C 语言编写, 属于标准 Windows 程序, 有非常好的图形介面和在线帮助, 使用户置身 Windows 中, 运用自如. 软件安装完成后, 在程序管理器中建立名为 Spectro Ellipsometry 的程序组, 在组中有 Auto Measure 和 Data Analysis 两个程度.

2 仪器的调试与使用

仪器的调试分为硬件调试和软件调试两大部分. 前者主要调整光路和信号的锁相放大, 后者主要调整程序的各相关参数. 这两部分显然是相互联系的. 调节光路时, 需借助 He-Ne 激光器进行预调, 确保获得准单色平面光波. 光线垂直通过所有光学元件的中心. 入射光线通过样品台的转动轴并在此反射. 最后可从 $I-\theta$ 曲线的形状判断光路调试的效果. 图 2 显示了不同信噪比时实验结果与傅里叶分析得到的正弦函数曲线(4)式很好地相符. 图中纵坐标只有相对意义, 没有消光状态, 即最小光强不为零, 是因为光线经过样品反射, 含有物质表面性质的信息, 是椭圆偏振光. 我们用信噪比表达实验值的可信度

$$\text{SNR} = \langle I \rangle / S(I) \quad (9)$$

SNR 为信噪比, $\langle I \rangle$ 为光强平均值, $S(I)$ 为标准差. 有

$$S(I) = [1/(n-1)] \sum_{i=1}^n (I_i^M - I_i^F)^2 \quad (10)$$

式中 n 为实验点的数目, I^M , I^F 分别为光强的实验值与对应的傅里叶分析值.

经过统计计算, 信噪比 SNR (a) 为 225, (b) 为 86. 从图上可以看出实验曲线很好地符合公式 (4).

仪器的准确度由系统误差决定. 系统误差主要来源以下几个方面: ① 起偏器与检偏器的初始位置的误差, 这取决于棱镜转动的角度最大误差 0.02° , ② 入射角的误差, 与光阑大小、样品反射平面位置有关, 精心调整可小于 0.05° , ③ 准单色光源频带展宽, 在满足探测器的灵敏度的条件下尽量调小单色仪狭缝, 一般情况下小于 0.5 nm . 我们测量了晶体 Si (111) 的椭偏光谱, 图 3、4 显示测量结果与文献 [7] 数据的比较. 图 3 中实验结果与文献 [7] 数据有较大的偏离. 这是由于硅片表面氧化层的影响. 用 3:1 氢氟酸水溶液腐蚀后的结果更接近些. 图 4 考虑氧化层的影响后, 实验与文献 [7] 数据符合得很好. 仿照 (10) 式, 我们有

$$S(P) = [1/(n-1)] \sum_i^n (P_i^M - P_i^L)^2 \quad (11)$$

式中 $S(P)$ 为偏差, P 为相应物理量, 上标 M, L 分别指测量值和文献数据. 对图 4 的数据进行计算, 结果折射率 n 偏差 ± 0.001 , 消光系数 k 偏差 ± 0.002 .

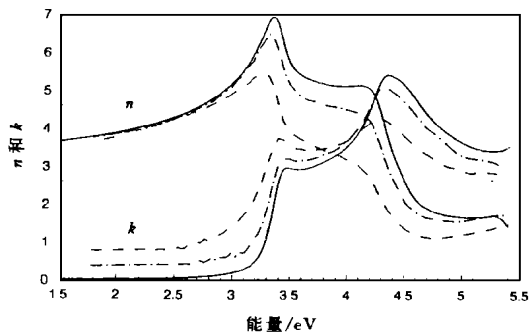


图 3 实验结果与文献 [7] 数据的比较. 实线为文献 [7] 数据, 短画线为未腐蚀的硅片, 点画线为 3:1 氢氟酸水溶液腐蚀的硅片

Fig. 3 Comparison among the complex index of refractive functions of crystalline Si (111)

仪器的精密性由其偶然误差决定. 这主要表现在稳定性、抗外界干扰能力等. ① 光电倍增管与锁相放大器噪声, 因为采用了锁相放大技术可适当选择时间常数较好地抑制噪声,

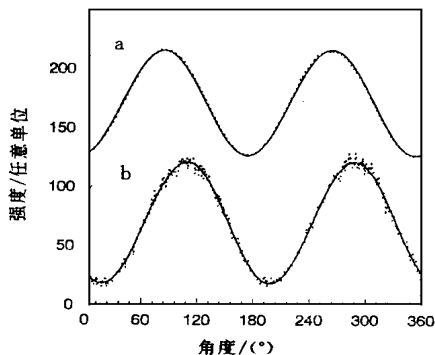


图 2 $I(\theta)$ 曲线图 (a) 信噪比较大, (b) 信噪比较小. 实线是傅里叶分析的理论拟合, 点线为实验数据

Fig. 2 Light intensity functions $I(\theta)$ for (a) large signal-to-noise ratio, (b) small signal-to-noise ratio

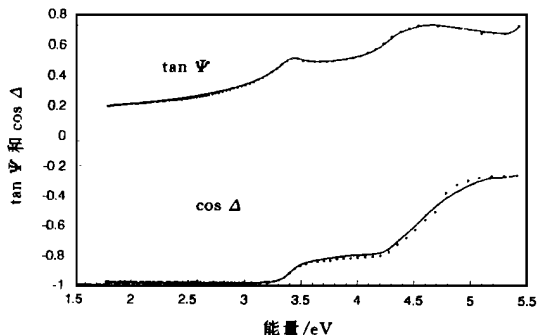


图 4 测量与计算的椭偏参数比较. 实线为由文献 [7] 数据计算值, 点线为假定硅片表面有 0.5 nm 氧化层的实验结果

Fig. 4 Comparison between measured and calculated ellipsometry parameters

SNR一般在 20 以上. ② 模数转换误差包括量化误差和电路随机误差, 仪器使用八位 AD 转换, 平均误差小于 0.5%. 实验中因采用计算机自动控制和数据采集, 减少了人为的偶然因数, 并增加测量的自由度. 对某一波长在 360 个不同角度上测量 7 次, 相当于 360 个分组测量. 自由度增大将降低结果的不确定度. 对同一表面的氧化层的单晶硅片样品, 在间隔 24 h 重复测量其椭偏光谱. 图 5 显示了两两次测量结果的比较. 它们很好地符合, 仿照 (11) 式, 我们对图 5 的数据进行计算, 结果折射率 n 偏差 ± 0.002 , 消光系数 k 偏差 ± 0.003 .

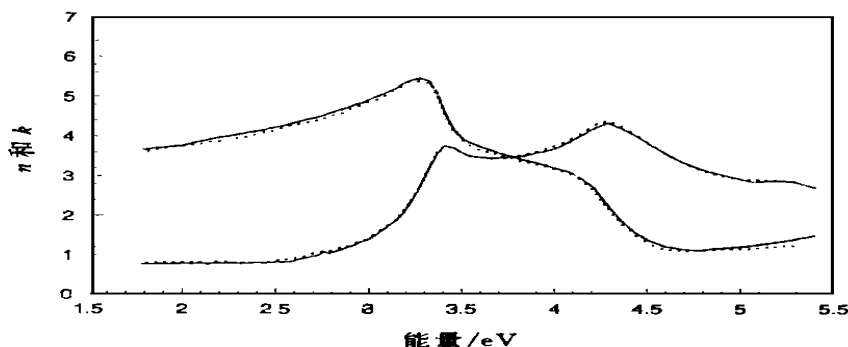


图 5 不同时间测量的复折射率函数比较. 实线为 12 h 前测量数据, 点线为 12 h 后的结果

Fig. 5 Difference between the complex refractive functions measured at 24 h intervals

仪器的灵敏度由光电倍增管的增益和量子效率以及锁相放大器的灵敏度决定. 我们选用光电倍增管的增益和平均量子效率分别为 100~480 (与电压有关) 和 50%, 锁相放大器的灵敏度可达 1 nV. 与光电倍增管组合在一起其理论灵敏度可达 1 nW. 实验结果在 0.1 μ W 光强时有较好的信噪比 SNR 为 20.

3 结论与讨论

作者研制的自动化椭偏光谱仪, 自动化程度高, 稳定性好, 具有很高的测量精密度和准确度, 工作波段延伸到近红外和紫外.

光度法椭偏光谱仪在测量过程中, 当 $\cos \Delta$ 在 ± 1 附近, 而 $\tan J$ 远离 1, 即光线的偏振状态与圆偏振光相差很大时, 实验的不可靠性显著增加. 这时, 可改变入射角来避开这些极端情况, 提高测量精确度. 仪器可方便地大范围改变入射角, 克服了这一难题. 另外, 变角度测量提供了独立的新数据, 可使椭偏谱分析变得简化.

参 考 文 献

1. Jasperson S N, Schnatterly S E. An improved method for high reflectivity ellipsometry based on a new polarization modulation technique. Rev Sci Instrum, 1969, 40: 761~768
2. Aspnes D E, Studna A A. High precision scanning ellipsometer. Appl Opt, 1975, 14: 220~228
3. Aspnes D E. New developments in spectroellipsometry: the challenge of surfaces. Thin Solid Films, 1993, 233: 1~8
4. 莫党, 朱雅新. 椭偏光谱和薄膜测量. 物理, 1976, 3: 140~143
5. 江任荣, 陈树光, 莫党, 等. TPP-1 型椭圆偏振光谱仪. 仪器仪表学报, 1983, 4 (4): 440~443

- 6 Born M, Wolf E. Principles of optics. Pergamon Press, New York. 1980. 24~ 32
- 7 Aspnes D E, Studna A A. Dielectric functions and optical parameters of Si, Ge, GaP, GaAs, GaSb, InP, InAs, and InSb from 1.5 to 6.0 eV. Phys Rev, 1983, B27 985~ 1009

High Precision Automatic Ellipsometer

Zhu Derui^{} Lai Tianshu Li Qiujun Mo Dang*

Abstract A home-made automatic photometric ellipsometer of rotating-analyzer type is reported. The ellipsometer consists of an optical system, a mechanical rotation system and a data acquisition system controlled fully by a 486/80 microcomputer. The wavelength range is 200~ 900 nm and the ellipsometer can continue to change the incident angle from 5 to 85°. The light sensitivity is $0.1\mu\text{W}$ and the precision is of the order of 0.001 for refractive index n and 0.002 for the extinction coefficient k .

Keywords ellipsometer, photometry, spectroellipsometry

* Department of Physics, Zhongshan University, Guangzhou 510275