

纳米厚度非透明介质薄膜的测量

缪建伟 崔明启 唐鄂生 修立松

(中国科学院高能物理研究所, 北京 100039)

摘要 本文叙述了用椭偏仪多次入射选择最佳法测量纳米厚度非透明薄膜原理及方法, 给出了由此方法测量得到的数据和用迭代法(下降法)计算得到的膜厚结果, 并与台阶仪测试结果进行了比较。

关键词: 椭偏仪; 台阶仪; 多次入射选择最佳法

1 引言

当今风靡世界的高温超导薄膜、磁性多层膜、人工超晶格及软 X 光学多层膜厚度均在零点几个纳米到几十纳米之间, 在制备工艺中的关键问题是膜厚测量和膜厚控制。膜厚控制通常有晶振法、干涉法、电阻法和时间控制法等, 而时间控制法最简单, 但要求镀膜设备必须稳定、可靠。以软 X 光学多层膜制备为例, 经常用的有电子束蒸发、磁控溅射和离子镀三种, 有人对这三种方法进行过实验比较^[1], 结论是磁控溅射是三者中速率最稳定。因此, 对磁控溅射设备用时间控制法制备多层膜可达到足够的精度, 但其前提是能够精确地测量出薄膜厚度, 从而确定准确的溅射速率。在众多的膜厚测量仪器中, 椭偏仪受到广泛应用, 其主要优点是测量范围宽(从几个纳米到几百纳米)和测量精度高($<0.5\text{nm}$)。通常用固定入射角测透明样品可得到精确值, 但对非透明介质薄膜样品就不能用固定入射角测量。R. M. A. Azzam 提出用多次入射角法测量非透明介质薄膜的厚度^[2], 但这方法是不完善的, 我们用多次入射选择最佳方法改进它, 并对磁控溅射方法制备 Si 单层膜进行了测量, 与台阶仪测量结果相一致。

2 最佳多次入射角的选择

设各向同性, 复折射率为 $N_f = n_f - ik_f$ 的薄膜(膜厚为 d_f) 均匀镀在复折射率为 $N_m = n_m - ik_m$ 的无限厚基板上, 当波长 λ 的平行光以入射角 Φ 照射到膜表面时(样品反射光路如图 1 所示), 该系统的椭偏函数 ρ 定义为

$$\rho = R_p/R_s = \tan\Psi e^{i\Delta} \quad (1)$$

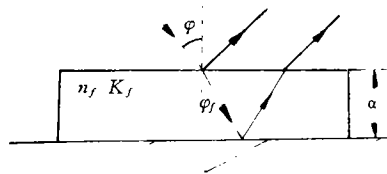


图 1 椭偏仪样品反射光路图

式中: Ψ, Δ 是实验测量值, 分别是椭偏仪的检偏角和起偏角的函数, R_p, R_s 为该系统的 P, S 偏振光的振幅反射率,

$$R_p = (r_{1p} + r_{2p}e^{-i\beta}) / (1 + r_{1p}r_{2p}e^{-i\beta}) \quad (2.a)$$

$$R_s = (r_{1s} + r_{2s}e^{-i\beta}) / (1 + r_{1s}r_{2s}e^{-i\beta}) \quad (2.b)$$

其中 $r_{1p}, r_{2p}, r_{1s}, r_{2s}$ 分别为第一表面 (真空—薄膜), 第二表面 (薄膜—基板) 对应于 P, S 偏振的 Fresnel 反射系统, β 为位相延迟因子, 由下式表示:

$$\beta = 4\pi N_f d \cos \Phi_f / \lambda \quad (3)$$

为中 Φ_i 为折射角, 由 Snell 定律 $\sin \Phi = N_f \sin \Phi_i$ 给出。

分离 (1) 式中的实部和虚部可以得到:

$$\Psi = \tan^{-1} |\rho(n_f, k_f, d, \Phi)| \quad (4.a)$$

$$\Delta = \text{aig}[\rho(n_f, k_f, d, \Phi)] \quad (4.b)$$

由于薄膜和块状物的光学常数是不同的, 所以在此把 n_f, k_f 当作未知数, 为此考虑用 n 次不同入射角下的测量, 得到一系列方程:

$$\Psi_{im} = \Psi_{ic}(n_f, k_f, d, \Phi_i) \quad (5.a)$$

$$\Delta_{im} = \Delta_{ic}(n_f, k_f, d, \Phi_i) \quad (5.b)$$

$$i = 1 \dots n$$

脚标, im 为第 i 次的测量值, ic 第 i 次的计算值 (由 4a, 4b)。

为程序设计方便, 对 (5a, 5b) 变形, 假设 n_f, k_f, d 代表矢量空间 A 的三个分量, 引进函数 $G(A)$,

$$G(A) = \sum_{i=1}^n \{ [\Delta_{im} - \Delta_{ic}(A, \Phi_i)]^2 + [\Psi_{im} - \Psi_{ic}(A, \Phi_i)]^2 \} \quad (6)$$

解 (5a)、(5b) 等价于求 (6) 式的极小值, 在实际过程中, 由于 Ψ 对光学常数和厚度的变化不敏感, 所以 A 主要依赖于 (6) 式的前半部分, 即:

$$G(A) \approx \sum_{i=1}^n [\Delta_{im} - \Delta_{ic}(A, \Phi_i)] \quad (7)$$

在求 (6) 式的解时, 先判断 (6) 式是否有唯一的解存在, 为此对 $\Psi_{ic}(A, \Phi_i)$ 和 $\Delta_{ic}(A, \Phi_i)$ 在 A_0 附近作泰勒展开:

$$\Psi_{ic}(A, \Phi_i) = \Psi_{ic}(A_0, \Phi_i) + \nabla[\Psi_{ic}(A_0, \Phi_i)] \cdot \delta A \quad (8.a)$$

$$\Delta_{ic}(A, \Phi_i) = \Delta_{ic}(A_0, \Phi_i) + \nabla[\Delta_{ic}(A_0, \Phi_i)] \cdot \delta A \quad (8.b)$$

$$i = 1 \dots n$$

考察 (6) 式是否有唯一存在等价于考察下式中 δA 是否有零解:

$$\nabla[\Psi_{ic}(A_0, \Phi_i)] \cdot \delta A = 0 \quad (9.a)$$

$$\nabla[\Delta_{ic}(A_0, \Phi_i)] \cdot \delta A = 0 \quad (9.b)$$

$$i = 1 \cdots n$$

变形展开为：

$$\frac{\partial \Psi_{ic}}{\partial n_f} \cdot \delta n_f + \frac{\partial \Psi_{ic}}{\partial k_f} \cdot \delta k_f + \frac{\partial \Psi_{ic}}{\partial d} \cdot \delta d = 0 \quad (10. a)$$

$$\frac{\partial \Delta_{ic}}{\partial n_f} \cdot \delta n_f + \frac{\partial \Delta_{ic}}{\partial k_f} \cdot \delta k_f + \frac{\partial \Delta_{ic}}{\partial d} \cdot \delta d = 0 \quad (10. b)$$

即关键在于看 (10) 式是否线性独立，如果线性独立，则 $\delta A = 0$ ，说明 (6) 式有唯一解，然而在实际过程中并非如此，事实上方程 (10) 的部分系数比在不同入射角下是常数，这样 δA 中某些量有非零解，因而 (6) 式有非唯一解。

表1 Mo 膜的模拟计算结果

| Φ (°) | $\frac{\partial \Delta / \partial n_f}{\partial \Delta / \partial d}$ | $\frac{\partial \Delta / \partial k_f}{\partial \Delta / \partial d}$ |
|------------|---|---|
| 51.0 | -118.2 | 79.9 |
| 52.0 | -117.2 | 78.7 |
| 53.0 | -112.2 | 74.8 |
| 54.0 | -116.4 | 77.1 |
| 55.0 | -121.0 | 79.5 |
| 56.0 | -121.5 | 79.1 |
| 57.0 | -122.3 | 79.9 |
| 58.0 | -125.6 | 80.1 |
| 59.0 | -129.1 | 81.4 |
| 60.0 | -127.4 | 79.3 |
| 61.0 | -133.6 | 81.9 |
| 62.0 | -134.8 | 81.2 |
| 63.0 | -140.2 | 82.8 |
| 64.0 | -144.4 | 83.4 |
| 65.0 | -149.2 | 84.1 |
| 66.0 | -154.9 | 84.7 |
| 67.0 | -165.3 | 87.2 |
| 68.0 | -175.1 | 88.5 |
| 69.0 | -192.7 | 92.6 |
| 70.0 | -210.8 | 95.0 |
| 71.0 | -240.1 | 99.9 |
| 72.0 | -289.7 | 108.6 |
| 73.0 | -387.7 | 125.9 |
| 74.0 | -643.2 | 169.7 |
| 75.0 | -3552.3 | 668.2 |
| 76.0 | 753.6 | -69.4 |
| 77.0 | 290.7 | 9.4 |
| 78.0 | 160.8 | 32.0 |
| 79.0 | 98.7 | 42.4 |
| 80.0 | 63.3 | 48.6 |

为了能得到我们想要的结果，下面考虑选取最佳入射角的过程，表1是模拟计算的结果，波长为632.8nm，衬底为玻璃 (1.51509, 0)，膜是 M_0 (3.9, -3.68)，厚度为15nm，在不同入射角下 (51°-80°)， Δ 对 A_0 的偏导比。(由于 Ψ 对 A_0 不敏感，而 Δ 对 A_0 较敏感，所以主要考察 Δ 对 A_0 的偏导)，从表1中看到，入射角在51°-62°间， $\frac{\partial \Delta / \partial k_f}{\partial \Delta / \partial d} \approx 80$ ，说明在此条件下，(10) 式中的 δk_f 和 δd 线性相关，即 k_f , d 是两个不能同时确定的量。对于75°-78°间，从表中看到不同入射角吸收下 $\frac{\partial \Delta / \partial k_f}{\partial \Delta / \partial d}$ 和 $\frac{\partial \Delta / \partial n_f}{\partial \Delta / \partial d}$ 都差别很大，说明 $\delta n_f, \delta k_f, \delta d$ 对 (10) 式线性独立，因而在此条件下，方程 (6) 有唯一解存在。

确定了方程组 (b) 有唯一解存在，可以通过很多方法解它，笔者选择了下降法，原理如下^{[3][4]}。选择初值 A_0 ，代入 (B) 式进行迭代 $A_{n+1} = A_n - \alpha GA_n$ ，式中 α 为控制收敛的常数，直到满足需要的精度 $G < \epsilon$ 中止。

3 实验结果和讨论

由于本程序用迭代法，所以初值的选取至关重要，如果初值取的不适当，迭代结果只会给出局部区域 G 的极小值，而非最小值。我现在用台阶仪测出的膜厚和块状物的光学常数

作为初值进行迭代，对不同的迭代结果选取 G 最小。

(1) 对样品93026# (玻璃上镀 Si, 溅射时间20分钟, 功率200W) 镀完后用台阶仪测量结果为115.0nm)

表2 椭偏仪对样品93026# 的迭代结果

| n_f | k_f | $d(\text{nm})$ | G |
|-------|-------|----------------|------|
| 4.13 | 0.49 | 103.5 | 0.47 |
| 3.92 | 0.40 | 112.0 | 0.48 |
| 3.83 | 0.35 | 116.0 | 0.35 |
| 3.80 | 0.37 | 114.5 | 0.39 |
| 3.74 | 0.34 | 119.0 | 0.88 |
| 3.59 | 0.25 | 126.5 | 0.55 |
| 3.44 | 0.19 | 134.0 | 0.67 |

表2是用椭偏仪由前述方法选取适当的多次入射角进行测量(镀完后当即测)的迭代结果: 从表2中看到 G 最小为0.35对应的 $n_f = 3.83, k_f = 0.35, d = 116.0\text{nm}$

(2) 样品93027# (玻璃上镀 Si, 20分钟, 功率200W) 镀完后隔一星期用台阶仪测厚度为135.0nm。

表3是椭偏仪测量 (镀完后当即测) 的迭代结果:

表3 椭偏仪对样品93027# 的迭代结果

| n_f | k_f | $d(\text{nm})$ | G |
|-------|-------|----------------|------|
| 4.12 | 0.49 | 105.0 | 0.55 |
| 3.95 | 0.40 | 112.5 | 0.52 |
| 3.89 | 0.38 | 114.5 | 0.47 |
| 3.89 | 0.38 | 114.5 | 0.47 |
| 3.83 | 0.34 | 117.5 | 0.45 |
| 3.80 | 0.31 | 119.5 | 0.83 |
| 3.71 | 0.26 | 123.5 | 1.04 |
| 3.63 | 0.23 | 127.0 | 0.91 |

从表3中选取 G 最小为0.45, 对应 $n_f = 3.83, k_f = 0.34, d = 117.5\text{nm}$

从以上实验结果可以看到, 对样品93026# 椭偏仪和台阶仪的测量结果符合较好, 而对样品93027# 二者相差较大。我们认为这差别的来源是由于样品放置一周后, 在 Si 的表面生成了一层 SiO_2 , 从而使厚度增加。另外, 两块样品是在溅射仪相同的条件下镀制的, 从原理上说厚度应该一致。我们的测量值93026# 为116.0nm, 93027# 为117.5nm, 误差为1.5nm, 这个误差

是溅射和椭偏仪测量两部分误差的迭加。

4 结 论

用椭偏仪测非透明介质膜，多次选择最佳入射角法是一种实用、精确的方法，它克服了固定入射角法和多次入射角法测量非透明介质膜的不足。

参 考 文 献

- [1] Xingdan Chen et al. , Proceeding of the Sino-Japan Symposium on Engineering Optics. 1992; 166
- [2] R. M. A. Azzam and N. M. bashara, Rllipsometry and Polarized Light. North-Hollard Publishing Comp. 1977
- [3] J. R. Rice, in Numerical Solution of Nonlinear Problems Computer, Science Center, Univ. of Mariland College Park, 1970; 80
- [4] J. Kowalk and M. R. Osborne, Methods of unconstrained Optimization Problem. American Elsevier, New York, 1968

Measuring and Calculating the Thickness of Non-transparent Dielectric Thin Film

Miao Jianwei, Cui Mingqi, Tang Esheng and Xiu Lisong
(*Institute of High Energy Physics, Academia Sinica, Beijing 100039*)

Abstract

In this paper, we use a new method of measuring and calculating the thickness of non-transparent film with Ellipsometer. It improves the multi-incident angle method putforward by R. M. A. Azzam. With this method two samples have been investigated (film Si on sub-stract BK7). And the results conform with those by Stepmeter.

Key words: Ellipsometer, Stepmeter, Multi-incident angle and optimum method