

文章编号: 1001-3806(2003)02-0094-03

用透射光谱和模拟退火算法确定薄膜光学常数

刘细成 王植恒 廖清君 赖成军
(四川大学物理学院, 成都, 610064)

摘要: 提出了用透射光谱曲线和模拟退火算法同时确定薄膜材料折射率 n 、消光系数 k 及薄膜厚度 d 的方法, 并给出了严格的理论公式和计算程序框架图。为了验证此方法的准确性和可行性, 先进行了计算模拟, 然后对 SiN_x 薄膜进行了测量。模拟结果与理论值非常接近, 根据实验结果恢复出来的曲线与原始实验曲线吻合得很好。此方法具有非破坏性、测量简单、操作方便、稳定性好和计算收敛速度快、精度高等特点。

关键词: 透射光谱; 模拟退火; 薄膜; 光学常数
中图分类号: O484.32 **文献标识码:** A

Determination of optical constants of thin films by means of transmission spectra and simulated annealing algorithm

Liu Xicheng, Wang Zhiheng, Liao Qingjun, Lai Chengjun
(Physics of Department, Sichuan University, Chengdu, 610064)

Abstract: A method is proposed to determinate the reflective, extinction coefficient and thickness of thin film material at the same time by means of transmission spectra and simulated annealing algorithm. The strict calculating formula and program diagram are provided. To check the accuracy and feasibility of the method, numerical simulation is first done, and then the SiN_x thin films are tested. Simulated results are highly closed to theoretical values, and reproduced curve in terms of the experimental results conforms to initial experimental curve. This method has a lot of advantages such as no damage, simplicity of measurement, facility of manipulation, good stability, fast convergence and high accuracy.

Key words: transmission spectra; simulated annealing; thin film; optical constant

引 言

人们已经提出了很多种测量薄膜光学常数的方法。如椭圆法^[1]、外差干涉测量法^[2]、移相干涉法^[3]、光度测量法^[4]、反射光谱法^[5]等等。这些方法各有千秋, 可以满足不同的需要, 但也有其局限性。椭圆法虽然精度高, 但当薄膜较厚时已很难测准, 且数据处理起来也很复杂。外差干涉法虽然解决了诸如光源的稳定性、散射光、内部反射等因素对测量精度的影响, 可由于要满足全反射条件, 因而被测折射率的大小受限。移相法会遇到相位的不确定性等问题。光度法和反射光谱法中利用分光光度计测量反射率时稳定性不好, 实验数据不是很精确。这是因为反射率对薄膜表面条件的依赖性很强, 对入射角的变化也很敏感。然而在测量透射率时这些

因素的影响要小得多, 因此, 透射率的测量值稳定, 测量数据精确^[4,6]。正是由于上述原因, 在过去 20 多年里, 更多的报道是采用透射光谱法^[7,8]。此方法的最大难点就是因为 n, k, d 与 T 之间的关系式是隐函数, 难以显化, 所以不能直接根据 T 的测量值进行求解, 从而大大增加了问题的难度。文中引入了搜索能力极强的模拟退火算法来进行反演计算, 能很快地搜索到一组最佳的 n, k, d 值, 从而可同时确定薄膜的 3 个光学常数 n, k, d , 并且对初始值的依赖性不强, 精度也很高。

1 理论基础

1.1 光学原理

为讨论问题的简便起见, 把薄膜视为质地均匀、各向同性的等厚膜。介质和薄膜的复折射率可表示为 $N = n + ki$, 实数部分 n 为折射率, 虚数部分 k 为消光系数。如图 1 所示, 在垂直入射条件下, 若考虑到 3 个界面的多次反射 (基底层内的多次反射光为非相干光), 则透过薄膜及基底 (透明或弱吸收) 的透

作者简介: 刘细成, 男, 1975 年 7 月出生。硕士研究生。主要从事光电信号处理方面的研究。

收稿日期: 2002-06-11; 收到修改稿日期: 2002-08-26

射率可表示为^[7]:

$$T = (1 - \rho) T_{123} U / (1 - \rho R_{321} U^2) \quad (1)$$

式中, $R_{321} = r_{321} r_{321}^*$ (2)

$$T_{123} = (n_3/n_1) t_{123} t_{123}^* \quad (3)$$

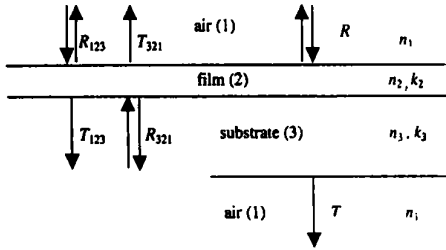


Fig. 1 Optical parameters and directions of the transmittance and reflectance

R_{321} 与 T_{123} 分别为不考虑基底的影响时沿321方向的反射率和沿123方向的透射率。 U 为考虑基底吸收时的吸收因子, ρ 为基底的第2个界面的反射率。 r_{321} 和 t_{123} 分别为电场矢量沿321方向的振幅反射率和沿123方向的振幅透射率。其表达式为:

$$r_{321} = [r_{32} + r_{21} \exp(i\Psi)] / [1 + r_{32} r_{21} \exp(i\Psi)] \quad (4)$$

$$t_{123} = [t_{12} t_{23} \exp(i\Psi/2)] / [1 + r_{12} r_{23} \exp(i\Psi)] \quad (5)$$

式中的 r_{ij} 和 t_{ij} 分别为 ij 交界面处的反射和透射菲涅耳系数, 可表示成:

$$r_{ij} = (N_i - N_j) / (N_i + N_j), t_{ij} = 2N_i / (N_i + N_j) \quad (6)$$

i 或 $j=1, 2, 3$, 分别表示入射介质层、薄膜介质层和基底介质层, $N_j = n_j + k_j i (j=1, 2, 3)$ 为其相应的复折射率。通常入射介质是空气, 有 $n_1=1, k_1=0$ 。 Ψ 为位相差, 其值为:

$$\Psi = 4\pi N_2 d / \lambda = 4\pi n_2 d / \lambda + 4\pi k_2 d i / \lambda \quad (7)$$

令 $\phi = 4\pi n_2 d / \lambda, \alpha = 4\pi k_2 / \lambda \quad (8)$

式中, ϕ 为位相角, α 为薄膜的吸收系数, d 为薄膜厚度, λ 为入射光的波长。

把(2)式~(8)式代入(1)式并整理得:

$$T = \frac{A \exp(ad)}{B \exp(2ad) + C \exp(ad) + D} \quad (9)$$

式中, $A = 16n_3(1 - \rho)(n_2^2 + k_2^2)U, B = st - Usv\rho, D = uv - U^2 t u \rho, C = [2(4n_3 k_2^2 - ZY) \cos \phi + 4k_2(n_3 Y + Z) \sin \phi] - \rho U^2 [4k_2(Z - n_3 Y) \sin \phi - 2(ZY + 4n_3 k_2^2) \cos \phi], \rho = [(n_1 - n_3)^2 + k_3^2] / [(n_1 + n_3)^2 + k_3^2], U^{-1} = (1 - \rho)^2 / 2T_s + [(1 - \rho)^4 / 4T_s^2 + \rho^2]^{1/2}, n_3 = n_1 [1/T_s + (1/T_s^2 - 1)^{1/2}], u = (n_1 - n_2)^2 + k_2^2, v = (n_2 - n_3)^2 + k_2^2, s = (n_1 + n_2)^2 + k_2^2, t = (n_2 + n_3)^2 + k_2^2, Y = n_2^2 - n_1^2 + k_2^2, Z = n_2^2 - n_3^2 + k_2^2。T_s是基底的透射率, 对透明基底有 $U=1, k_3=0$ 。$

由(9)式可知, $T = T(n_1, n_2, k_2, d, n_3, k_3, \lambda)$, 若

n_1, n_3, k_3, λ 均已知, 此时透过率 T 就是薄膜光学常数 n_2, k_2, d 的函数了, 即 $T = T(n_2, k_2, d)$ 。因该函数是隐函数, 难以显化, 故必须选择合适的计算方法才能达到求解的目的。具体求解过程是, 先用分光光度计测出垂直入射情况下光透过薄膜及基底后的透射光谱曲线, 然后在曲线上选取3个波长值, 查出相应点的透过率值以构成三方程联立方程组:

$$\begin{cases} T_1 = T(n_2, k_2, d; \lambda_1) \\ T_2 = T(n_2, k_2, d; \lambda_2) \\ T_3 = T(n_2, k_2, d; \lambda_3) \end{cases}$$

接下来的问题就归结为利用模拟退火算法来求解非线性方程组了。

1.2 模拟退火处理过程

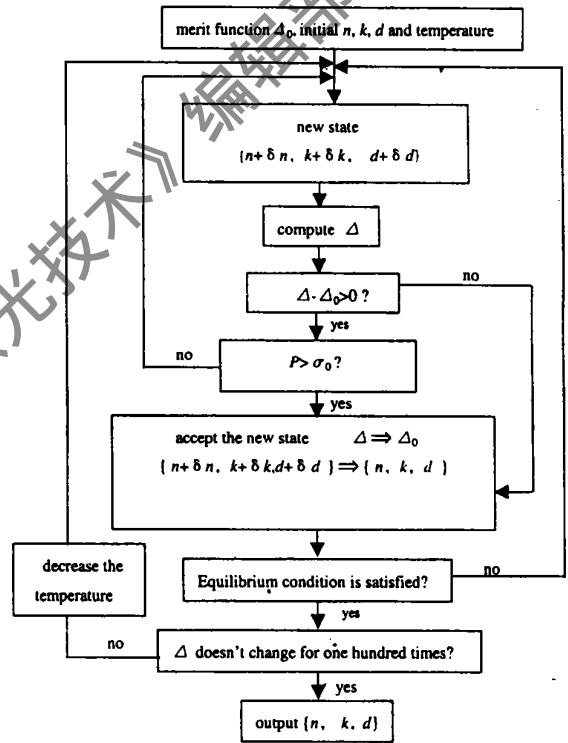


Fig. 2 The frame of the program for solving the parameters n, k and d by simulated annealing algorithm, p is a probability and σ_0 is random number between 0 and 1

由 Metropolis 等^[9]提出并发展起来的模拟退火算法因其在全局范围内有极强的搜索能力而被广泛应用于诸多领域^[10]。文中就引入了模拟退火算法来求解前面所提到的非线性方程组。因有3个值需要计算, 故必须从光谱曲线上选取3个测量值 T_{m_1}, T_{m_2} 和 T_{m_3} 。若采用最小二乘方法对计算值和实际测量值之间的接近程度进行判断, 则评价函数:

$$\Delta = (T_c - T_{m_1})^2 + (T_c - T_{m_2})^2 + (T_c - T_{m_3})^2 \quad (10)$$

下标 c 与 m 分别表示计算值和实际测量值。 Δ 越

小,说明计算值越接近实际测量值。于是问题就归结为求 Δ 的最小值。程序的基本框架图见图 2。

2 实验及结果

为了验证此方法的正确性和可行性,先进行了计算模拟。假设一均质、各向同性的等厚膜,其折射率为 $n_2=2, k_2=0.001, d=1000\text{nm}$ 。其它的参数如下: $n_1=1, k_1=0, n_3=3, k_3=0$ 。由假设条件就可以根据(9)式绘出 T 随波长变化的理论曲线,如图 3 所示。从曲线上,选取了 3 组数据(理论上可任选 3 点,在这里选取了 3 个极值位置)进行计算: $\lambda_1=615\text{nm}, T_1=0.721; \lambda_2=667\text{nm}, T_2=0.5894; \lambda_3=800\text{nm}, T_3=0.5911$ 。此时,评价函数中的实际测量值即为理论值,即 $T_1=T_m, T_2=T_m, T_3=T_m$ 。从理论上来说,在没有任何误差的情况下, $\Delta=0$ 。可实际上在搜索过程中步长不可能无限小,再加上计算机计算精度的限制,因而无法无限地逼近真实值。根据(10)式求得结果为: $\Delta=1.0370 \times 10^{-8}, n_2=2.0008, k_2=0.0010, d=999.2528$ 。 k_2 等于真实值, n_2 和 d 的精度几乎高达 10^{-4} 。结果表明,此方法是切实可行的,且计算精度很高。在实际计算过程中,只要把步长乘以一个呈高斯分布的随机数,再严格控制收敛条件,就可把范围设得较大,且对初始值的依赖性也很小。这样,即使在对待薄膜了解不多的情况下,也能很快地搜索到一组最佳值,大大减少了因初始值和搜寻范围设得不当所带来的误差。

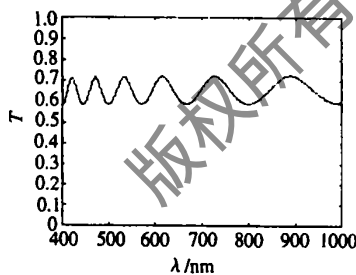


Fig. 3 Calculated transmittance curve of imaginary film versus wavelength

用该方法对本实验室自制的 SiN_x 薄膜进行了测量。此薄膜是采用 PECVD 法沉积在玻璃上的。基底的参数^[4]为 $n_3=1.475, k_3=0$ 。用紫外分光光度计 UV-2100 测出其透射光谱曲线如图 4 中实线所示。为了尽量减少不考虑色散所带来的影响,在光谱曲线的透明区选择了 3 组相隔较近的数据进行计算: $\lambda_1=616.5\text{nm}, T_{m_1}=87.59\%; \lambda_2=633.0\text{nm}, T_{m_2}=85.10\%; \lambda_3=696.0\text{nm}, T_{m_3}=70.36\%$ 。在此波段内,认为折射率与吸收系数均为常数。根据

(10) 式解得结果为: $\Delta=5.9897 \times 10^{-9}, n_2=2.0971, k_2=0.0043, d=586.3633\text{nm}$ 。把所得结果代入(9)式计算出 $500\text{nm} \sim 800\text{nm}$ 波段范围内的透过率曲线,并与实验曲线进行了比较。如图 4 所示,在 $616.5\text{nm} \sim 696.0\text{nm}$ 这一段计算结果与原始实验曲线吻合得很好。在 $696.0\text{nm} \sim 800.0\text{nm}$ 这一段也比较吻合,但在 $559\text{nm} \sim 616.5\text{nm}$ 这一段有一定误差。在 $500\text{nm} \sim 559\text{nm}$ 这一段误差就更大了。这主要是离计算所选的光谱区越远,不考虑色散和吸收系数随波长的变化所带来的误差就越大,再加之在短波段区色散本身就很不严重所致。在实际求解过程中,可根据具体要求选择计算区。如果要精确恢复出整个光谱区内的实验曲线的话,则需要准确知道折射率与吸收系数随波长的变化关系(特别是在吸收区)。

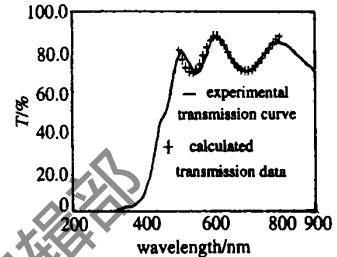


Fig. 4 Calculated transmittance data, with experimental transmission curve, versus wavelength for SiN_x film

3 分析与讨论

(1) 基底应足够厚(一般 $d_3 > 0.4\text{mm}$),以避免基底层内的多次反射光产生干涉,因为这些干涉条纹会使薄膜的透射光谱变模糊,从而使数据分析起来变得困难;(2) 若薄膜的吸收系数很大,则膜不能太厚,否则透过率太小;(3) 基底一般是透明的,若存在吸收,则吸收系数不能很大,否则透过率也会太小(因基底很厚),如果先测出基底的透过率 T_s ,再根据 n_3 与 T_s 及 U 与 T_s 的关系式求出整个光谱区内的 n_3 和 U ,这样就可以使结果的精度更高;(4) 用一个简单的数值方程就可以同时求出薄膜的 3 个光学常数。尽管在求解过程中作了一些近似(即在所求解的光谱区内认为折射率与吸收系数均为常数),但并没有因此带来很大的误差,且在所求解的区域内精度还很高。因而,若采用分段求解的方法,既可避免色散的影响,又可解出不同波段的 n 值。

4 结论

根据模拟退火算法编制的该计算机软件能在可能有解的区域内进行大面积快速搜索,从而能求得更为精确的一组值,方程组的解一定存在。该软件

(下转第 112 页)

电路的流压转换系数和电压放大倍数的乘积。这里,采用了比值的方法来获得该转换系数的值。

实验中,首先把样品换为光洁度很好的平面镜,其反射比 r 可近似为 1,并且,平面镜的 $\theta = 0^\circ$, $\phi = 1$ 。同时调整 P_1 和 P_2 ,使 $A = 0^\circ$, $\alpha = 0^\circ$,即入射光为偏振方向与水平方位是 0° 的线偏振光,检偏器 P_2 与水平方位夹角也是 0° 。被混浊介质后向散射的光以 45° 角入射在分束器上, $i_1 = 45^\circ$ 。根据《光学手册》,取 $n_1 = 1.516$, i_2 由菲涅耳公式 $n_1 \sin i_1 = n_2 \sin i_2$ 计算得到: $i_2 = 27.8^\circ$ 。根据(3)式,(4)式得: $r_p = 0.0958$, $r_s = 0.309$, $(r_s^2 + r_p^2) = 0.105$; $\sin \theta = 0.825$, $\cos \theta = 0.565$ 。

当 $A = 0^\circ$ 时,(8)式可简化为:

$$S_0 = r(r_p^2 + r_s^2)(1 + \sin \theta \cos 2\alpha + \cos 2\alpha \sin \theta \cos 2\phi - \sin 2\alpha \cos \theta \sin 2\phi) \quad (9)$$

对于平面镜, $\theta = 0^\circ$, $\phi = 1$, $r = 1$,并且此时 $\alpha = 0^\circ$,将数据代入(9)式可得: $S_{01} = r(r_p^2 + r_s^2)(2 + 2\sin \theta) = 0.383$ 。

需要说明的是,这里 S_{01} 的数值是一个相对值。 $S_{01} = 0.383$ 是指:如果把入射至样品前的光强定为单位 1,则此时由光电探测器所探测的光强 S_{01} 的大小就是 0.383。

根据锁相放大器读数得出电压信号 V_1 ,从而就得到了光电转换系统转换系数 C 的值:

$$C = V_1 / S_{01} = V_1 / 0.383 \quad (10)$$

2.4 3 个特性参数大小的求解

换上样品,记录锁相放大器的读数并得到电压信号 V_{00} ;使 P_2 方位角再分别为 $45^\circ, 90^\circ$,读出锁相放大器的示数并得到电压信号 V_{045}, V_{090} 。根据(10)式给出的 C 值的大小,分别得到当 P_2 方位角

为 3 个特殊值时,被光电探测器所检测的光的斯托克斯矢量 S_0 的大小:

$$S_0 = V / C = V S_{01} / V_1 \quad (\text{其中 } \alpha = 0^\circ, 45^\circ, 90^\circ) \quad (11)$$

再由(9)式可以得到,当 $\alpha = 0^\circ, 45^\circ, 90^\circ$ 时,用 3 个特性参数表示的 S_0 :

$$\left. \begin{aligned} S_{00} &= 0.105 r(1 + 0.825 + 0.825 \cos 2\theta + \cos 2\theta) \\ S_{045} &= 0.105 r(1 + 0.825 \cos 2\theta - 0.565 \sin 2\theta) \\ S_{090} &= 0.105 r(1 - 0.825 + 0.825 \cos 2\theta - \cos 2\theta) \end{aligned} \right\} \quad (12)$$

联立(11)式,(12)式并求解方程组可得到 3 个特性参数的值。对不同情况下的混浊介质测定特性参数,就可以研究特性参数的变化规律。

3 小结

利用微弱信号检测和偏振光学测试技术,设计了研究混浊介质 180° 后向散射特性的系统,重点对该系统的原理进行了阐述。混浊介质的后向散射特性研究有着潜在的巨大价值,该系统同国外通用的研究系统相比,由于没有使用昂贵的 PEM,因此,具有实用化和便于推广的优点。

参 考 文 献

- [1] 王建岗,杨莉松,王桂英 *et al.* 激光与光电子学进展,2001(1): 14.
- [2] Moes C J M, Van Germert M J C. *Appl Opt*, 1989, 28(12): 2292 ~ 2296.
- [3] Hielscher A H, Mourant J R, Bigio I J. *J Appl Opt*, 1997, 36(1): 125 ~ 135.
- [4] Cameron B D, Rakovic M J. *Opt Lett*, 1998, 23(7): 485 ~ 487.
- [5] Vitkin A, Studinski B C N. *J Biomedical Opt*, 2000, 5(3): 330 ~ 337.
- [6] 李 晖,谢树森,陆祖康 *et al.* 光学学报, 1999, 19(12): 1662.

(上接第 96 页)

几乎不依赖初始值,且可把搜索范围设得较大,这就为在不太了解薄膜参数的情况下解决此问题提供了可靠有力的计算工具。用该方法可以同时确定薄膜的 3 个光学常数,避开了分别求解 3 个参数所带来的人为误差。加之,用分光光度计测量透过率时操作简单、测试方便、实验数据波动性小。这就使得此方法具有非破坏性、测试过程简单、计算收敛速度快,收敛性好、精度高等优点。

参 考 文 献

- [1] Jakopic G, Papousek W. *Appl Opt*, 2000, 39(16): 2727 ~ 2732.

- [2] Chiu M, Lee J, Su D. *Appl Opt*, 1999, 38(9): 4047 ~ 4052.
- [3] Cheng Y Y, Wyant J C. *Appl Opt*, 1985, 24(6): 804 ~ 807.
- [4] 张奇志. 单层 SiN_x 衰减型相移掩膜研究. 四川大学博士论文, 2001: 93 ~ 113.
- [5] Leveque G, Villachon Renard Y. *Appl Opt*, 1990, 29(22): 3207 ~ 3212.
- [6] Khawaja E E, Bouamrane F. *Appl Opt*, 1993, 32(7): 1168 ~ 1172.
- [7] Cisneros J I. *Appl Opt*, 1998, 37(22): 5262 ~ 5270.
- [8] Aqili A K S, Maqsood A. *Appl Opt*, 2002, 41(1): 218 ~ 214.
- [9] Kirkpatrick S, Gelatt C D Jr, Vecchi M P. *Science*, 1983, 220(4598): 671 ~ 680.
- [10] 廖清君. 单波长消光椭圆仪的数据处理研究. 四川大学硕士论文, 2002: 76 ~ 79.