

第三章 金屬薄膜光學常數之測量

3.1 前言

金屬薄膜的複數折射率及其厚度的量測在光學元件的製作品質上與 Kretschmann 組態結構上扮演著極重要的角色。如何準確的測量金屬膜的厚度及其複數折射率將有助於提高光學元件的品質與表面電漿共振偵測器的解析度。至目前為止，有許多測量金屬膜厚及複數折射率的方法，其包括對於反射光或穿透光的量測、反射光的干涉條紋量測及橢圓儀法等等[1~9]。上述這些方法，雖然可以快速的量測且不破壞樣品，同時還具有容易操作的特性，但大都與量測光強度有關，因此量測的精確度容易受到光源穩定度及外界環境擾動的影響。此外，上述之方法亦需改變入射角以求得金屬膜厚及其複數折射率，如此亦會造成實驗上的複雜性。



為了能夠精確測得金屬膜的厚度及其複數折射率，同時還能夠兼具光學裝置簡單、操作容易、高穩定度、高精確度、不易受外界影響等優點；因此在本章中，將提出一種簡單的方法來測量金屬膜的複數折射率及厚度。

3.2 原理

本方法的實驗架構如 Fig. 3.1 所示，為了方便起見，光沿+z 方向前進，水平方向為 x 軸。所使用的光源是由 p-與 s-偏光間具有角頻差為 ω 的外差光源，經四分之一波片 Q 所調制出的旋光外差光束，其右旋偏光與左旋偏光間的角頻差為 ω ，而此一旋光外差光源的電場形式可表示為[10]:

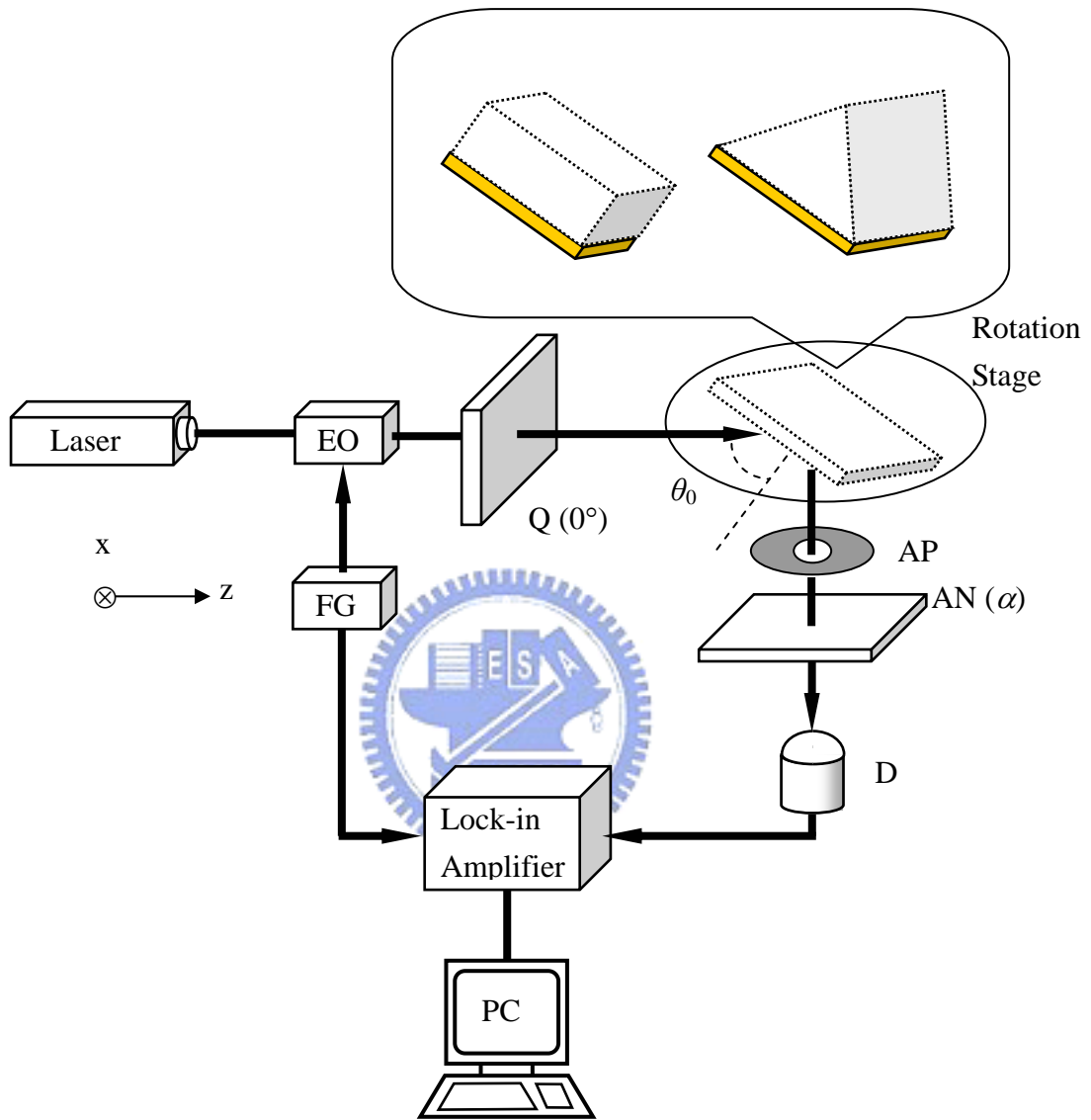


Fig. 3.1 金屬膜的光學參數之測量架構。

$$\begin{aligned}
E_i &= Q(0^\circ) \cdot EO(\omega t) \cdot E_0 = \begin{pmatrix} \cos(\frac{\omega t}{2}) \\ -\sin(\frac{\omega t}{2}) \end{pmatrix} \\
&= \frac{1}{2} \begin{bmatrix} 1 \\ i \end{bmatrix} \exp(i\frac{\omega t}{2}) + \frac{1}{2} \begin{bmatrix} 1 \\ -i \end{bmatrix} \exp(-i\frac{\omega t}{2}).
\end{aligned} \tag{3.1}$$

當旋光外差光源以入射角為 θ_0 入射至待測物 S ，並在金屬薄膜內形成如Fig. 3.2所示的多重反射；此多重反射光(E_{1r} 、 E_{2r} 、 E_{3r} ...)再經通過一微小孔徑的光闌AP和檢偏板AN，最後由偵測器D接收信號。在此加入光闌的目的是為了阻擋經由基板反射回來的光進入到偵測器裏。而根據Fresnel方程式，經過待測物多重反射後的p-偏光及s-偏光的反射係數可表示為[11]:

$$r_p = \frac{r_{01,p} + r_{12,p} e^{i2\delta}}{1 + r_{01,p} r_{12,p} e^{i2\delta}}, \tag{3.2a}$$

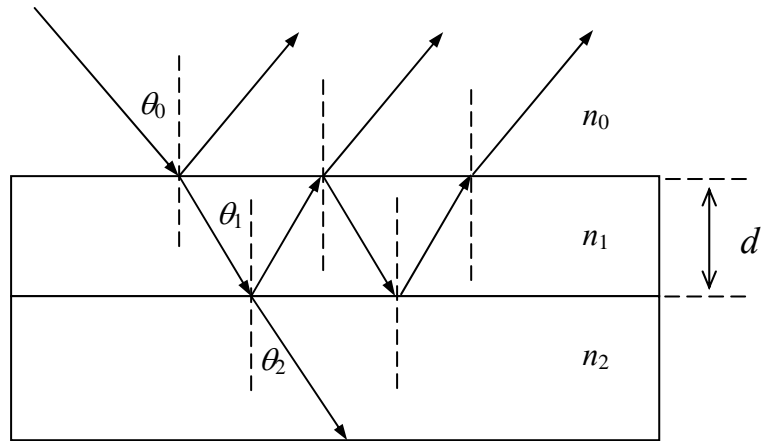
$$r_s = \frac{r_{01,s} + r_{12,s} e^{i2\delta}}{1 + r_{01,s} r_{12,s} e^{i2\delta}}, \tag{3.2b}$$



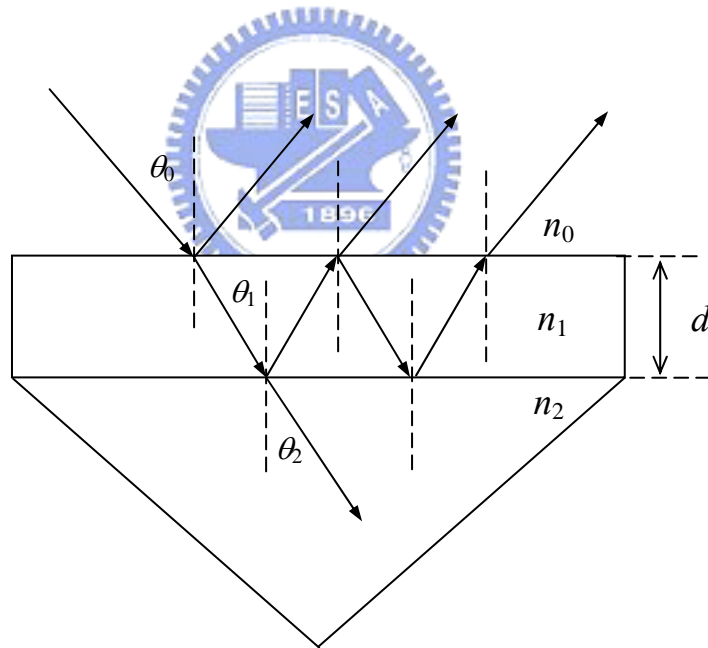
其中 $r_{ij,p}$ 、 $r_{ij,s}$ 代表從介質 i 層進入介質 j 層的p-偏光和s-偏光的反射係數，下標的0、1、2分別代表空氣、金屬膜及玻璃基板，其折射率分別表示為 n_0 、 $n_1=n+ik$ 和 n_2 ；根據Fresnel方程式 r_{01} 、 r_{12} 及 δ 可表示為[11]:

$$r_{01,p} = \frac{n_1 \cos \theta_0 - n_0 \cos \theta_1}{n_1 \cos \theta_0 + n_0 \cos \theta_1}, \quad r_{12,p} = \frac{n_2 \cos \theta_1 - n_1 \cos \theta_2}{n_2 \cos \theta_1 + n_1 \cos \theta_2}, \tag{3.3a}$$

$$r_{01,s} = \frac{n_0 \cos \theta_0 - n_1 \cos \theta_1}{n_0 \cos \theta_0 + n_1 \cos \theta_1}, \quad r_{12,s} = \frac{n_1 \cos \theta_1 - n_2 \cos \theta_2}{n_1 \cos \theta_1 + n_2 \cos \theta_2}, \tag{3.3b}$$



(a) 在平板金屬膜中。



(b) 在稜鏡金屬膜中。

Fig. 3.2 多重反射光之示意圖。

$$\delta = \frac{2\pi d \sqrt{n_1^2 - n_0^2 \sin^2 \theta_0}}{\lambda}, \quad (3.3c)$$

式中 λ 代表入射光的波長； θ_1 和 θ_2 分別表示為空氣到金屬膜和金屬膜到基板的折射角； d 代表金屬膜的厚度。因此，由上述的條件則可知 r_p 與 r_s 為複數型式。

假如檢偏板 AN 的穿透軸方位角相對於 x 軸在 α 上，最後在偵測器上的振幅可表示為：

$$E_t = \begin{pmatrix} \cos^2 \alpha & \sin \alpha \cos \alpha \\ \sin \alpha \cos \alpha & \sin^2 \alpha \end{pmatrix} \begin{pmatrix} r_p & 0 \\ 0 & r_s \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \cos \frac{\omega t}{2} \\ -\sin \frac{\omega t}{2} \end{pmatrix}$$

$$= \begin{pmatrix} r_p \cos^2 \alpha \cos \frac{\omega t}{2} - r_s \sin \alpha \cos \alpha \sin \frac{\omega t}{2} \\ r_p \sin \alpha \cos \alpha \cos \frac{\omega t}{2} - r_s \sin^2 \alpha \sin \frac{\omega t}{2} \end{pmatrix}. \quad (3.4)$$

因此，在偵測器 D 上所得到的測試光強度可表示為：

$$I_t = |E_t|^2 = I_0 [1 + \gamma \cos(\omega t + \phi)], \quad (3.5)$$

其中 I_t 為測試信號； I_0 及 γ 分別為調制訊號的振幅項與對比度(visibility)； ϕ 為經由待測物所引進p-偏光及s-偏光間的相位差，分別可表示為：

$$I_0 = \frac{1}{2}(|r_p|^2 \cos^2 \alpha + |r_s|^2 \sin^2 \alpha), \quad (3.6a)$$

$$\gamma = \frac{\sqrt{A^2 + B^2}}{I_0}, \quad (3.6b)$$

$$A = \frac{1}{2}(|r_p|^2 \cos^2 \alpha - |r_s|^2 \sin^2 \alpha), \quad (3.6c)$$

$$B = \frac{1}{2}(r_p r_s^* + r_s r_p^*) \sin \alpha \cos \alpha, \quad (3.6d)$$

和

$$\phi = \tan^{-1}\left(\frac{B}{A}\right) = \tan^{-1}\left[\frac{(r_p r_s^* + r_s r_p^*) \sin \alpha \cos \alpha}{|r_p|^2 \cos^2 \alpha - |r_s|^2 \sin^2 \alpha}\right], \quad (3.6e)$$

式中， r_p^* 與 r_s^* 代表 r_p 及 r_s 的共軛複數。另一方面，當電子訊號被帶通濾波器濾波後則形成為一參考信號，其形式可表示為：

$$I_r = \frac{1}{2}[1 + \cos(\omega t)]. \quad (3.7)$$

其中 I_r 為參考信號。將測試訊號 I_t 及參考訊號 I_r 輸入至鎖相放大器中便可以得到經由待測物引進之相位差。

由(3.2)-(3.3)和(3.6e)可以看出 r_p 、 r_s 、 r_p^* 及 r_s^* 為 n 、 k 、 d 及 θ_0 的函數，因此，相位差 ϕ 為 n 、 k 、 d 、 θ_0 及 α 的函數。當入射角固定時，則相位差 ϕ 為 n 、 k 、 d 及 α

的函數，此時可以透過改變三個檢偏板方位角來得到三個方程式，如(3.8)式所示，接著利用三維牛頓法解此聯立方程式，進而可求出金屬膜的 n 、 k 及 d 。

$$\phi_1 = f(n, k, d, \alpha_1), \quad (3.8a)$$

$$\phi_2 = f(n, k, d, \alpha_2), \quad (3.8b)$$

$$\phi_3 = f(n, k, d, \alpha_3). \quad (3.8c)$$

3.3 實驗結果

為了驗證本方法之可行性，本研究使用 5 種在基板上鍍有不同厚度的複數折射率之金屬膜，其中三種是 BK7 平板玻璃基板，代號為 Sample 1~3，另外兩種是 BK7 玻璃稜鏡，代號為 Sample 4~5；稜鏡式的結構常被用來作為表面電漿共振(surface plasmon resonance, SPR)的探頭[12,13]。平板式和稜鏡式鍍膜所使用的機台分別為一般商用濺鍍(sputter)機台(Model Modulus, Singulus Technologies)和(Model BA510, Balzers)，同時在濺鍍薄膜時其真空度為 5mtorr，功率為 1000W，所成長薄膜之均勻性為 $\pm 2\%$ ，精確度可以到達 $\pm 1\text{nm}$ 。旋光外差光源的左旋光和右旋光之間具有 1kHz 的頻差，其主要是由 632.8nm 的 He-Ne、四分之一波片 Q 和由函數產生器 FG 所驅動的電光晶體 EO (Model 4001, New Focus, Inc)所組成；同時也使用了角解析度為 0.005° 的高解析旋轉平台(Model PS- θ -90, Japan Chuo Precision Industrial Company)放置待測樣品，解析度為 0.001° 的鎖相放大器(Model SR-850, Stanford Research System)測量相位。為了方便，在實驗上入射角固定在 50° ，檢偏板 α 分別調為 50° 、 55° 和 65° ，測量結果和估算結果則被彙整如 Table 3.1 和 Table 3.2 所示；在 Table 3.2 中，最右三欄是以橢圓儀(Model eta, Steag)所測得的結果。由實驗的結果證實，它們具有非常好的對應性。

Table 3.1 當 $\alpha=50^\circ$ 、 55° 和 60° 時的測量相位差結果。

Sample No.	ϕ_1	ϕ_2	ϕ_3
1(plate)	75.357°	68.897°	61.947°
2(plate)	78.951°	72.621°	65.777°
3(plate)	82.406°	76.287°	69.644°
4(prism)	82.966°	76.879°	70.274°
5(prism)	83.774°	77.746°	71.202°

Table 3.2 估算金屬膜 n 、 k 和 d 之結果與參考值。

Sample No.	estimated results			reference data		
	n	k	d (nm)	n	k	d (nm)
1(plate)	0.288	3.536	15.83	0.288	3.543	15.89
2(plate)	0.294	3.574	20.99	0.295	3.573	21.11
3(plate)	0.201	3.562	31.99	0.199	3.560	32.64
4(prism)	0.197	3.563	35.17	0.201	3.561	35.28
5(prism)	0.211	3.596	40.24	0.213	3.599	40.12

3.4 討論

本研究上有三個待求參數(n 、 k 和 d)，所以至少需要三個方程式來解；在我們的方法上是利用調整檢偏板的方位角來得到三個方程式，進而解得 n 、 k 和 d 值。至於其他的方法[4~6]則是需要改變三個入射角來得到三個方程式，這樣的

測量法，將會讓實驗變得相當繁瑣。

在本研究中所測試的樣品是利用濺鍍的方式，金原子及靶材內之雜質均會在玻璃基板上重新排列，且排列方式與濺鍍(sputter)外加電壓、腔內溫度和壓力、玻璃基板是否受應力等因素有關。因此，本研究所測量的樣品其折射率無法維持一恆定值[14]。但本研究所測量的結果和橢圓儀所測量的結果幾乎是一樣的，所以證明本方法是相當可行的。

其次，從(3.2)-(3.3)和(3.6e)上，我們可以解得：

$$|\Delta n| = -\frac{B_3C_2|\Delta\phi_1| - B_2C_3|\Delta\phi_1| - B_3C_1|\Delta\phi_2| + B_1C_3|\Delta\phi_2| + B_2C_1|\Delta\phi_3| - B_1C_2|\Delta\phi_3|}{-A_3B_2C_1 + A_2B_3C_1 + A_3B_1C_2 - A_1B_3C_2 - A_2B_1C_3 + A_1B_2C_3}, \quad (3.9)$$

$$|\Delta k| = -\frac{A_3C_2|\Delta\phi_1| - A_2C_3|\Delta\phi_1| - A_3C_1|\Delta\phi_2| + A_1C_3|\Delta\phi_2| + A_2C_1|\Delta\phi_3| - A_1C_2|\Delta\phi_3|}{A_3B_2C_1 - A_2B_3C_1 - A_3B_1C_2 + A_1B_3C_2 + A_2B_1C_3 - A_1B_2C_3}, \quad (3.10)$$

$$|\Delta d| = -\frac{A_3B_2|\Delta\phi_1| - A_2B_3|\Delta\phi_1| - A_3B_1|\Delta\phi_2| + A_1B_3|\Delta\phi_2| + A_2B_1|\Delta\phi_3| - A_1B_2|\Delta\phi_3|}{-A_3B_2C_1 + A_2B_3C_1 + A_3B_1C_2 - A_1B_3C_2 - A_2B_1C_3 + A_1B_2C_3}, \quad (3.11)$$

其中

$$A_1 = \left| \frac{\partial\phi_1}{\partial n} \right|; \quad A_2 = \left| \frac{\partial\phi_2}{\partial n} \right|; \quad A_3 = \left| \frac{\partial\phi_3}{\partial n} \right|; \quad (3.12a)$$

$$B_1 = \left| \frac{\partial \phi_1}{\partial k} \right|; B_2 = \left| \frac{\partial \phi_2}{\partial k} \right|; B_3 = \left| \frac{\partial \phi_3}{\partial k} \right|; \quad (3.12b)$$

和

$$C_1 = \left| \frac{\partial \phi_1}{\partial d} \right|; C_2 = \left| \frac{\partial \phi_2}{\partial d} \right|; C_3 = \left| \frac{\partial \phi_3}{\partial d} \right|; \quad (3.12c)$$

式中 Δn 、 Δk 和 Δd 分別是 n 、 k 和 d 的誤差量； $\Delta \phi_1$ 、 $\Delta \phi_2$ 和 $\Delta \phi_3$ 分別是 ϕ_1 、 ϕ_2 和 ϕ_3 的誤差量；考慮偏振旋轉誤差、偏極混合誤差及相位計本身的誤差等誤差因素，本實驗的相位誤差量 $|\Delta \phi_1| = |\Delta \phi_2| = |\Delta \phi_3| \cong 0.03^\circ$ [5]，且將各個待測物由前所述之方法得到的複數折射率及厚度，如Table 3.2 所示，分別代入(3.9)~(3.11)式中，同時經由數學軟體 "MATHEMATICA" 計算，則可分別求出各測試樣品的誤差量，其結果如Table 3.3 所示。此外，在我們的實驗上，入射角 θ_0 和檢偏板方位角 α 可以解析到 0.005° 和 0.08° ，因此，入射角 θ_0 和檢偏板方位角 α 對相位所引起的誤差量可以計算得到 0.006° 和 0.005° ，此值遠小於相位誤差量 0.03° ，所以在此可以不用考慮其引起的誤差。

Table 3.3 金屬膜 Δn 、 Δk 和 Δd 的誤差量。

Sample	$ \Delta n $	$ \Delta k $	$ \Delta d $ (nm)
1	1.01×10^{-3}	1.45×10^{-3}	0.05
2	1.81×10^{-3}	2.53×10^{-3}	0.08
3	2.3×10^{-3}	3.09×10^{-3}	0.18
4	1.35×10^{-3}	1.86×10^{-3}	0.23
5	1.43×10^{-3}	3.14×10^{-3}	0.33

由於待測膜為強吸收性質的金屬膜，因此必須考慮空氣-薄膜介面及薄膜-玻璃介面間的反射係數 E_{1r} 及 E_{2r} 。基於干涉訊號對比度的考量，它必須滿足：

$$\frac{|E_{2r}|^2}{|E_{1r}|^2} > 0.1. \quad (3.13)$$

因此，我們可以計算得到：

$$kd < \frac{\lambda}{8\pi \cos \theta_1} \ln \left| \frac{6.25 \times 10^{-3} (n_1^2 \cos^2 \theta_0 - \cos^2 \theta_1)^2 (n_2 \cos \theta_1 + n_1 \cos \theta_2)^2}{n_1^2 \cos^2 \theta_0 \cos^2 \theta_1 (n_2 \cos \theta_1 - n_1 \cos \theta_2)^2} \right|. \quad (3.14)$$

由(3.14)式可以看出，金屬膜厚度的測量範圍和入射角、基板和金屬膜的折射率有關；將實驗條件和測量結果代入(3.14)式中，因此可以計算出金膜厚度的測量範圍將小於 55 nm。

此外由於物質的折射率會因為波長改變而改變，因此，若想測量物質在不同波長下之光學常數仍可使用本方法所提之光學架構；但必須將光源改以該波長的雷射來測量。在此同時，必須注意的是電光晶體的半波電壓也將隨之調整，才可以獲得精確的測量結果。

3.5 小結

在本章中提出一種簡單的光學測量方法來測量金屬薄膜的複數折射率和厚

度，其方法是利用旋光外差光由待測金屬薄膜的一側射入，光在薄金屬間發生多重反射，接著利用旋光外差干涉術測量光在薄金屬膜內發生多重反射所引入之 p-偏光與 s-偏光間的相位差，代入由 Fresnel 方程所推導的特殊方程組，同時藉由旋轉檢偏板的方式，進而可解出金屬膜的複數折射率及其膜厚。由於本方法是利用共光程旋光外差干涉術且光學架構為固定入射角的架構，因此具有容易操作、光路易於校正、高穩定度、高精確度、不易受外界影響等的優點，而此量測系統也將有助於提昇表面電漿共振偵測器的解析度。



參考文獻

1. M. Cathelinaud, F. Lemarquis, and C. Amra, "Index determination of opaque and semitransparent metallic films: application to light absorbers," *Appl. Opt.* **41**, 2546-2554 (2002).
2. E. Elizalde, J. M. Frigerio, and J. Rivory, "Determination of thickness and optical constants of thin films from photometric and ellipsometric," *Appl. Opt.* **25**, 4557-4561 (1986).
3. H. G. Tompkins, T. Zhu, and E. Chen, "Determining thickness of thin metal films with spectroscopic ellipsometry for application in magnetic random-access memory," *J. Vac. Sci. Technol. A.* **16**, 1297-1302 (1998).
4. V. A. Lodi, S. Donati, S. Merlo, and D. Beltrami, "Fast characterization of metal for fiber attenuators," *Appl. Opt.* **37**, 5298-5301 (1998).
5. M. H. Chiu, J. Y. Lee, and D. C. Su, "Complex refractive-index measurement based on Fresnel's equations and the uses of heterodyne interferometry," *Appl. Opt.* **38**, 4047-4052 (1999).
6. H. Kitajima, K. Hiea, and Y. Suematsu, "Use of a total absorption ATR method complex refractive indices of metal-foils," *J. Opt. Soc. Am.* **70**, 1507-1513 (1980).
7. J. Lekner, "Determination of complex refractive index and thickness of a homogeneous layer by combined reflection and transmission ellipsometry," *J. Opt. Soc. Am. A.* **11**, 2156-2158 (1994).
8. E. W. Rogala, and H. H. Barrett, "Phase-shifting interferometer/ellipsometer

- capable of measuring the complex index of refraction and the surface profile of a test surface," *J. Opt. Am. A.* **15**, 538-548 (1998).
9. A. B. Djuricic, T. Fritz, and K. Leo, "Determination of optical incidence reflectance and transmittance measurements," *Opt. Commun.* **166**, 35-42 (1999).
 10. J. Y. Lee and D. C. Su, "A method for measuring Brewster's angle by circularly polarized heterodyne interferometry," *J. Opt.* **29**, 349 (1998).
 11. M. Born and E. Wolf, "*Principles of optics*," Pergamon, Oxford, UK, 7th ed. ch. 1 (1980).
 12. K. H. Chen, C. C. Hsu, and D. C. Su, "Measurement of wavelength shift by using surface plasmon resonance heterodyne interferometry," *Opt. Commun.* **209**, 167-171 (2002).
 13. Y. C. Cheng, W. K. Su, and J. H. Liou, "Application of a liquid sensor based on surface plasma wave excitation to distinguish methyl alcohol from ethyl alcohol," *Opt. Eng.* **39**, 311-314 (2000).
 14. S. A. Campbell, "*The science and engineering of microelectronic fabrication*," Oxford University Press, 1st ed. 292 (1990).