

文章编号 1004-924X(2013)04-0858-06

## 用模拟退火法确定 $\text{MgF}_2$ 薄膜折射率和厚度

郭 春<sup>1,2</sup>, 李斌成<sup>1\*</sup>

(1. 中国科学院 光电技术研究所, 四川 成都 610209; 2. 中国科学院大学, 北京 100049)

**摘要:**研究了确定单层  $\text{MgF}_2$  薄膜的物理厚度及其在深紫外/真空紫外波段折射率的方法。首先,利用钼舟热蒸发工艺在 B270 基底上制备了单层  $\text{MgF}_2$  薄膜。然后,依据  $\text{MgF}_2$  单层膜在不同入射角下的反射光谱,采用模拟退火方法确定了  $\text{MgF}_2$  薄膜在 170~260 nm 波段的折射率和物理厚度,并与由椭圆偏振法确定的薄膜参数进行了比较。实验显示,采用模拟退火和椭圆偏振两种方法确定的  $\text{MgF}_2$  薄膜厚度分别为 248.5 nm 和 249.5 nm,偏差为 0.4%;而用上述两种方法在 240~260 nm 波段确定的单层  $\text{MgF}_2$  薄膜的折射率偏差均小于 0.003。得到的结果证实了依据不同入射角下的反射光谱,用模拟退火方法确定  $\text{MgF}_2$  薄膜厚度和折射率的可靠性。

**关键词:**薄膜参数测量;折射率测量;膜厚测量;模拟退火算法; $\text{MgF}_2$

中图分类号:O484.5 文献标识码:A doi:10.3788/OPE.20132104.0858

## Determination of refractive index and thickness of $\text{MgF}_2$ film using simulated annealing algorithm

GUO Chun<sup>1,2</sup>, LI Bin-cheng<sup>1\*</sup>

(1. Institute of Optics and Electronics, Chinese Academy of Sciences, Chengdu 610209, China;

2. University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China)

\* Corresponding author, E-mail: bcli@ioe.ac.cn

**Abstract:** This paper focused on the method to determine the physical thickness of a single-layer  $\text{MgF}_2$  film and its refractive index in the deep ultraviolet/vacuum ultraviolet spectral ranges. The single-layer  $\text{MgF}_2$  film was prepared on the B270 substrate by a Mo boat evaporation method. On the basis of reflectance spectra of the single-layer  $\text{MgF}_2$  film at various incidence angles, the refractive index and thickness of the film in 170–260 nm were determined by the simulated annealing algorithm and were compared with those of determined by ellipsometry. Experimental results indicate that the thicknesses of the  $\text{MgF}_2$  film are 248.5 nm and 249.5 nm by the simulated annealing algorithm and ellipsometry, respectively, which shows a deviation of 0.4%. Moreover, the refractive indexes of the  $\text{MgF}_2$  film at 240–260 nm obtained by two method mentioned above show a deviation less than 0.003. Obtained results prove that the method employing the reflectance spectral and simulated annealing is reliable for determining the refractive index and thickness of the  $\text{MgF}_2$  film.

**Key words:** thin film parameter measurement; refractive index measurement; thin film thickness measurement; simulated annealing algorithm;  $\text{MgF}_2$

收稿日期:2012-12-24;修订日期:2013-01-24.

基金项目:国家重大专项资助项目

## 1 引言

随着深紫外/真空紫外激光光源的快速发展及广泛应用,对深紫外/真空紫外光学薄膜元件的性能要求也越来越高。确定薄膜材料在深紫外/真空紫外波段的折射率是设计和制备高性能光学薄膜的前提。目前,确定薄膜材料在深紫外/真空紫外波段折射率的常用方法是分光光度法<sup>[1-4]</sup>和椭偏法<sup>[5-6]</sup>。分光光度法多依据薄膜光谱的极值包络来确定光学薄膜的折射率,但极值包络的获取会受到基底材料吸收、薄膜材料折射率与基底折射率的对比值和薄膜物理厚度等因素的影响,进而影响分光光度法确定光学薄膜折射率的精度。模拟退火算法具有全局搜索能力强,不依赖搜索初始值等优点,已用于确定光学薄膜的物理厚度和折射率<sup>[7-10]</sup>。

MgF<sub>2</sub> 薄膜吸收低、机械强度高,是深紫外/真空紫外波段最常用的低折射率材料,研究 MgF<sub>2</sub> 薄膜在深紫外/真空紫外波段的光学特性具有重要的意义。本文基于不同入射角下单层 MgF<sub>2</sub> 薄膜的反射光谱,结合模拟退火算法确定了薄膜的厚度及其在 170~260 nm 波长的折射率,并与椭圆偏振法获得的测量结果相比较(其中折射率在 240~260 nm 波段),验证了依据不同入射角下的反射光谱,用模拟退火方法确定 MgF<sub>2</sub> 薄膜厚度和折射率的可靠性。

## 2 方法原理

### 2.1 光学薄膜特性

单层光学薄膜系统如图 1 所示。这里把单层光学薄膜视作均匀的各向同性的等厚膜层,其厚度为  $d$ ,折射率为  $n_1$ ,基底材料和入射介质的折射率分别为  $n_2$  和  $n_0$ 。当一束光以入射角  $\theta_0$  入射到单层光学薄膜表面时,该单层光学薄膜的特征矩阵<sup>[11]</sup>为:

$$\begin{bmatrix} \cos \delta & \frac{i}{\eta} \sin \delta \\ i\eta \sin \delta & \cos \delta \end{bmatrix}. \quad (1)$$

对于 p-偏振光和 s-偏振光,膜层的位相厚度  $\delta$  均为:

$$\delta = \frac{2\pi}{\lambda} n_1 d \cos \theta_1, \quad (2)$$

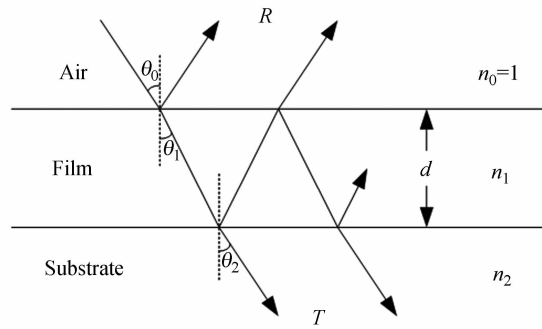


图 1 单层光学薄膜结构示意图

Fig. 1 Schematic of single-layer optical coating

折射角  $\theta_1$  由折射定律确定,相应的 p-偏振光和 s-偏振光的导纳  $\eta_1$  分别为:

$$\begin{cases} \eta_{1p} = n_1 / \cos \theta_1 \\ \eta_{1s} = n_1 \cos \theta_1 \end{cases}. \quad (3)$$

定义参数 B 和 C:

$$\begin{bmatrix} B \\ C \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \cos \delta & \frac{i}{\eta} \sin \delta \\ i\eta \sin \delta & \cos \delta \end{bmatrix} \begin{bmatrix} 1 \\ \eta_2 \end{bmatrix}, \quad (4)$$

式中:  $\eta_2$  为光学薄膜基底的导纳。对于 p-偏振光和 s-偏振光,则有:

$$\begin{cases} \eta_{2p} = n_2 / \cos \theta_2 \\ \eta_{2s} = n_2 \cos \theta_2 \end{cases}. \quad (5)$$

同理,折射角  $\theta_2$  亦由折射定律确定。那么,单层光学薄膜的反射率为:

$$R = \left( \frac{\eta_0 B - C}{\eta_0 B + C} \right) \left( \frac{\eta_0 B - C}{\eta_0 B + C} \right)^*, \quad (6)$$

式中: \* 代表参量的复共轭,  $\eta_0$  为入射介质的导纳,相应的 p-偏振光和 s-偏振光导纳分别为:

$$\begin{cases} \eta_{0p} = n_0 / \cos \theta_0 \\ \eta_{0s} = n_0 \cos \theta_0 \end{cases}. \quad (7)$$

需要说明的是,由方程(6)给出的单层光学薄膜的反射率为单面反射光谱,不包含基底背面反射。另外,由方程(6)可知单层光学薄膜的反射率是组成薄膜系统 3 种材料的折射率、薄膜厚度、光线在 3 种介质中传播角度和波长的函数。基于折射定律,一旦单层光学薄膜系统中  $n_0$ ,  $n_2$ ,  $\theta_0$  和  $\lambda$  确定,单层光学薄膜的反射率仅是薄膜材料折射率和厚度的函数,即:

$$R = R(n_1, d). \quad (8)$$

### 2.2 模拟退火算法

模拟退火算法由 Metropolis<sup>[12]</sup> 提出,并由 Kirkpatrick<sup>[13]</sup> 成功地应用在组合最优化问题中。

该算法是局部搜索算法的扩展,它的优点在于按照特定的概率接受搜索区域中不好的解,并依据设定的退火策略,成功地获取全局最优解。在依据分光光度计测量的光谱来确定光学薄膜折射率和厚度时,通常存在多解。分光光度计获取的信息越多,确定的光学薄膜参数越精确。一般可用的信息有:不同入射角下的光学薄膜光谱或者 s-/p-偏振光谱等。显然,模拟退火算法能解决上述的多值问题,并获取全局最优解。

由方程(8)可知,薄膜的光谱性能是其折射率和厚度的函数。在运用模拟退火方法确定光学薄膜折射率和厚度的过程中。对于任何给定的薄膜,其厚度是不随波长变化的恒定值,而薄膜的折射率与波长间存在色散关系,因此采用同一评价函数同时优化薄膜折射率和厚度势必将影响模拟退火算法的寻优效率。为提高算法的寻优效率,本文采用两个评价函数组合获取全局最优解。首先假定光学薄膜厚度的范围,并用评价函数  $\Delta_1$  确定某个选取厚度时各个波长处折射率的最优解;接着按照一定的步长递增或递减薄膜厚度;重复上述折射率的寻优过程,并用评价函数  $\Delta_2$  确定薄膜厚度的最优解;最后输出厚度,并对获取的光学薄膜折射率进行柯西方程拟合。在模拟退火方法

确定薄膜参数过程中,假定薄膜具有理想的光学表面,同时薄膜折射率不随厚度变化。

在运用模拟退火方法确定光学薄膜折射率和物理厚度的过程中,相应的评价函数定义为:

$$\Delta_1(\lambda) = \sum_{x=1}^g |f_{xc}(\lambda) - f_{xm}(\lambda)|$$

$$\Delta_2 = \sqrt{\sum_{x=1}^g F_x^2}, F_x = \sum_{j=1}^l |f_{xc}(\lambda_j) - f_{xm}(\lambda_j)| \quad (9)$$

式中:  $f_{xc}$  和  $f_{xm}$  的参数分别代表理论计算数据和实测数据;  $g$  和  $l$  分别代表光谱数据的种类和实测波长数。结合反射光谱和模拟退火算法确定光学薄膜参数的流程如图 2 所示。

### 3 实验及结果

#### 3.1 MgF<sub>2</sub> 薄膜样品制备与检测

采用钨舟热蒸发工艺,在 Leybold Optics 公司的 SYRUSpro 1110DUV 型真空镀膜机上制备了单层 MgF<sub>2</sub> 光学薄膜样品。薄膜沉积时,镀膜室内的真空度高于  $4.0 \times 10^{-4}$  Pa,基底温度为 250 °C,光学薄膜的沉积速率和物理厚度均采用石英晶振监控,单层薄膜的沉积速率控制在 0.2 nm/s。热蒸发薄膜材料采用 Merck 公司的 MgF<sub>2</sub> 颗粒;薄膜基底是 Schott 公司的单面抛光 B270(直径为 2.54 cm(1 inch),厚度为 1 mm)。用 B270 作深紫外/真空紫外波段光学薄膜的基底,是因为 B270 具有较高的热膨胀系数( $9.4 \times 10^{-6}/K$ , 20~300 °C)。采用 ZYGO 干涉仪测得在 0.70 mm×0.53 mm 内基底的均方根表面粗糙度为 0.7 nm。MgF<sub>2</sub> 薄膜制备前,采用乙醇和乙醚的混合液清洗 B270 基底,并用紫外灯清洁处理 40 min。

采用美国 McPherson 公司 VUVaS2000 真空紫外分光光度计测量了单层 MgF<sub>2</sub> 薄膜样品和 B270 基底的反射率,为避免空气中氧气、碳氢污染以及水吸附对真空紫外波段光谱测量的影响,测量在真空中进行。测量时,样品室的真空度高于  $1.0 \times 10^{-2}$  Pa。为避免基底的背面反射对单层膜单面反射光谱测量的影响, MgF<sub>2</sub> 薄膜样品测量前已对 B270 基底背面进行打磨和涂黑处理。单层 MgF<sub>2</sub> 薄膜样品反射光谱的测量角度分别选取 10° 和 20°,没镀膜的 B270 基底的反射光谱测

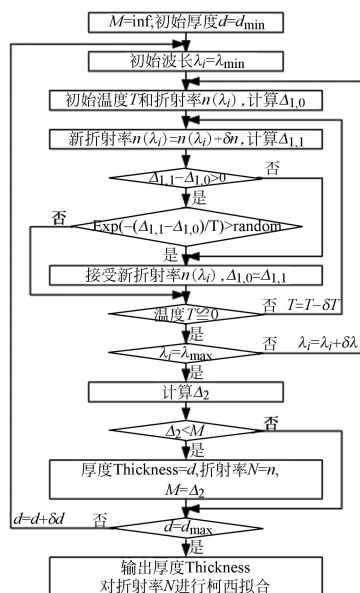


图 2 结合反射光谱和模拟退火算法确定光学薄膜参数的流程图

Fig. 2 Flow chart of optical constant determination of thin film using reflectance spectrum and simulated annealing algorithm

量角度为  $10^\circ$ 。为验证采用模拟退火方法确定光学薄膜折射率和厚度的可靠性,采用 J. A. Woollam 公司 VASE 型椭圆偏仪对单层  $\text{MgF}_2$  薄膜的物理厚度和 240~400 nm 波段的折射率进行了测定,测量角度分别为  $65^\circ$  和  $75^\circ$ 。椭圆偏振法确定薄膜参数时,假定薄膜具有理想的光学表面,薄膜折射率不随厚度变化,并采用柯西方程表述折射率与波长的色散关系。

### 3.2 $\text{MgF}_2$ 薄膜折射率和厚度确定

由于  $\text{MgF}_2$  薄膜在深紫外波段的消光系数一般在  $10^{-4}$  量级。根据菲涅耳公式可知,在反射率计算中薄膜折射率的作用远大于消光系数的影响。本文在运用模拟退火方法确定单层  $\text{MgF}_2$  薄膜参数时,仅考虑光学薄膜折射率对反射率计算的作用。为了精确地确定单层  $\text{MgF}_2$  薄膜的折射率和厚度,至少需要测量 2 个或 2 个以上的  $\text{MgF}_2$  薄膜光谱数据。实验中分别测量了入射角度为  $10^\circ$  和  $20^\circ$  时,单层  $\text{MgF}_2$  薄膜的反射光谱。实测单层  $\text{MgF}_2$  薄膜和 B270 基底的光谱数据如图 3 所示。

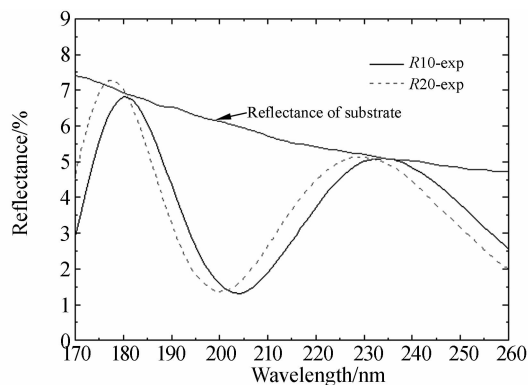


图 3 分光光谱仪实测光谱曲线

Fig. 3 Measured spectra of  $\text{MgF}_2$  film at various incidence angles and B270 substrate

图 4 为采用模拟退火方法拟合确定  $\text{MgF}_2$  薄膜参数后,理论计算得到的 170~260 nm 波段的薄膜反射率和实测反射光谱,入射角分别为  $10^\circ$  和  $20^\circ$ 。由图可知,理论计算的反射光谱和实测数据非常吻合。随着波长变短,理论计算的薄膜反射率与实测光谱数据间存在微小的偏差,导致两者间偏差的原因可能是薄膜非理想的光学表面。采用 ZYGO 干涉仪实测得到  $0.70 \text{ mm} \times$

$0.53 \text{ mm}$  上  $\text{MgF}_2$  薄膜的均方根粗糙度为  $1.1 \text{ nm}$ 。通常粗糙的薄膜表面会影响光学薄膜的光谱性能,从而影响薄膜参数的确定。表面粗糙层对确定薄膜参数的影响是另一个研究重点,相关结果将在其它论文中给出全面报道,本文不再赘述。

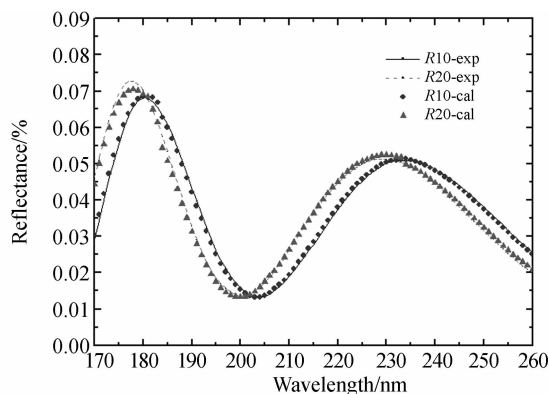
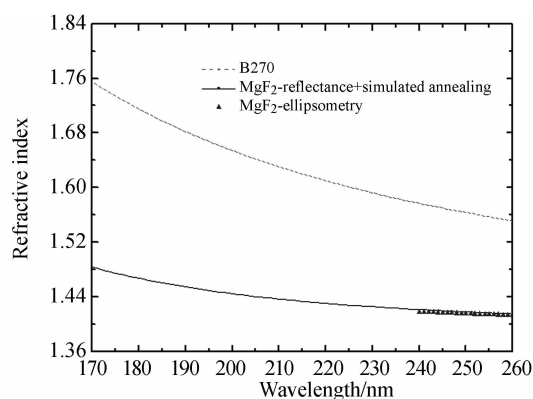


图 4  $\text{MgF}_2$  薄膜的理论计算和实际测量反射率曲线  
Fig. 4 Comparison of fitted results with experimental data of  $\text{MgF}_2$  film using simulated annealing algorithm

为确定单层  $\text{MgF}_2$  薄膜的折射率和厚度,首先必须确定 B270 基底的折射率。由于 B270 基底的消光系数较低,在反射率计算中可以忽略它的影响。一旦测量确定了 B270 基底的单面反射率  $R_s$ ,便可由下式计算得到 B270 基底的折射率  $n_s$ :

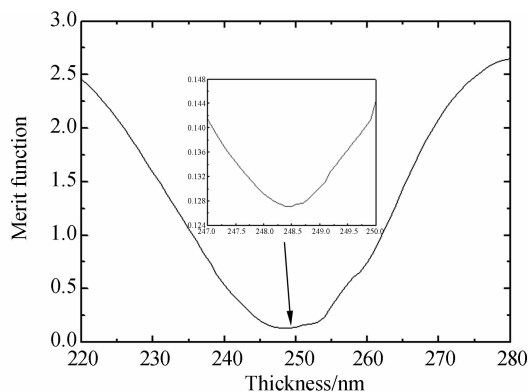
$$n_s = \frac{1 + \sqrt{R_s}}{1 - \sqrt{R_s}} \quad (10)$$

实测 B270 基底的单面反射率如图 3 所示,考虑折射率随波长变化的色散关系,采用柯西方程拟合 B270 基底的折射率,计算结果如图 5(a) 所示。图 5(a) 中实线所示数据是  $10^\circ$  和  $20^\circ$  入射角下的  $\text{MgF}_2$  薄膜反射光谱,采用模拟退火方法拟合确定的薄膜折射率,实心上三角所标注的数据是使用椭圆偏振法拟合  $\text{MgF}_2$  薄膜折射率的结果。由于椭圆偏仪的最短工作波长为 240 nm,实验中数据测量取 240~400 nm 波段。两种方法确定  $\text{MgF}_2$  薄膜的折射率在 240~260 nm 波段内,偏差均小于 0.003。图 5(b) 所示为模拟退火方法确定  $\text{MgF}_2$  薄膜参数时,评价函数  $\Delta z$  随薄膜物理厚度的变化关系。该图说明了运用模拟退火方



(a) 折射率与波长的关系

(a) Refractive index vs. wavelength



(b) 评价函数与薄膜厚度的关系

(b) Merit function vs. film thickness

图 5 单层  $\text{MgF}_2$  薄膜的折射率和厚度Fig. 5 Achieved refractive index and thickness of  $\text{MgF}_2$  film

法确定薄膜物理厚度的唯一性。由图示可知,模拟退火算法确定的  $\text{MgF}_2$  薄膜厚度为 248.5 nm, 而使用椭圆偏振法测量该薄膜的厚度为 249.5 nm, 两种方法测量的偏差为 0.4%。由此可知,在测量  $\text{MgF}_2$  薄膜的折射率和薄膜厚度时,模拟退火方法和椭圆偏振法确定的结果一致性很好。

## 4 结 论

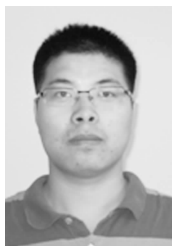
本文研究了钨舟热蒸发工艺制备的单层  $\text{MgF}_2$  薄膜样品在不同入射角下的反射光谱,采用模拟退火方法确定了薄膜在 170~260 nm 波段的折射率和物理厚度,并与由椭圆偏振法确定的薄膜参数进行了比较。该方法采用薄膜的反射光谱作为目标数据,适用于强吸收基底上制备的光学薄膜参数确定,同时对薄膜的厚度要求低,通过结合多人射角下的薄膜反射光谱来提高薄膜参数的确定精度。模拟退火方法具有全局寻优能力强,不依赖初始值的特点;另外采用两个评价函数分别优化薄膜的厚度和折射率,可进一步提高模拟退火方法确定薄膜参数的效率。采用模拟退火方法和椭圆偏振法确定的  $\text{MgF}_2$  薄膜厚度分别为 248.5 nm 和 249.5 nm, 两者偏差仅为 0.4%;而在 240~260 nm 波段两种方法确定的  $\text{MgF}_2$  薄膜折射率偏差均小于 0.003, 由此验证了模拟退火方法确定  $\text{MgF}_2$  薄膜厚度和折射率的可靠性。

## 参考文献:

- [1] 郭春, 林大伟, 张云洞, 等. 光度法确定  $\text{LaF}_3$  薄膜的光学常数 [J]. 光学学报, 2011, 31: 731001-731007.  
GUO CH, LIN D W, ZHANG Y D, *et al.*. Determination of optical constants of  $\text{LaF}_3$  films from spectrophotometric measurements [J]. *Acta Optica Sinica*, 2011, 31: 731001-731007. (in Chinese)
- [2] 薛春荣, 易葵, 齐红基, 等. 氟化物材料在深紫外波段的光学常数 [J]. 物理学报, 2009, 58: 5035-5040.  
XUE CH R, YI K, QI H J, *et al.*. Optical constants of fluoride films in the DUV range [J]. *Acta Phys. Sin.*, 2009, 58: 5035-5040. (in Chinese)
- [3] TIKHONRAVOV A, TRUBETSKOV M, AMOTCHKINA T, *et al.*. Reliable determination of wavelength dependence of thin films refractive index [J]. *SPIE*, 2003, 5188:331-342.
- [4] NIISAKA S, SAITO T, SAITO J, *et al.*. Development of optical coatings for 157-nm lithography. I. coating materials [J]. *Appl. Opt.*, 2002, 41: 3242-3247.
- [5] WANG J, MAIER R, DEWA P G, *et al.*. Nanoporous structure of a  $\text{GdF}_3$  thin film evaluated by variable angle spectroscopic ellipsometry [J]. *Appl. Opt.*, 2007, 46: 3221-3226.
- [6] LIAO B H, LIU M C, LEE C C, *et al.*. Process for deposition of  $\text{AlF}_3$  thin films [J]. *Appl. Opt.*, 2008, 47:C41-45.
- [7] ZHAO Y, WANG Y, GONG H, *et al.*. Annealing effects on structure and laser-induced damage threshold of  $\text{Ta}_2\text{O}_5/\text{SiO}_2$  dielectric mirrors [J]. *Appl. Surf. Sci.*, 2003, 210:353-358.

- [8] 晏春愉,高斐,张佳雯,等.用模拟退火算法研究非晶硅薄膜的光学性质[J]. 光学技术, 2009, 35: 492-495.  
YAN CH Y, GAO F, ZHANG J W, *et al.*. Study on the optical properties of amorphous silicon film by simulated annealing algorithm [J]. *Optical Technique*, 2009, 35:492-495. (in Chinese)
- [9] 刘细成,王植恒,廖清君,等.用透射光谱和模拟退火算法确定薄膜光学常数[J]. 激光技术, 2003, 27: 94-97.  
LIU X CH, WANG ZH H, LIAO Q J, *et al.*. Determination of optical constants of thin films by means of transmission spectra and simulated annealing algorithm [J]. *Laser Technology*, 2003, 27: 94-97. (in Chinese)
- [10] 薛春荣,易葵,邵建达,等.几种氟化物薄膜材料的光学特性[J]. 光学精密工程, 2009, 17: 1507-1512.  
XUE CH R, YI K, SHAO J D, *et al.*. Optical properties of several fluoride materials [J]. *Opt. Precision Eng.*, 2009, 17: 1507-1512. (in Chinese)
- [11] MASLEOD A H. *Thin-Film Optical Filters* [M]. 3rd Edition. Institute of Physics Publishing Bristol and Philadelphia, 2001.
- [12] METROPLIS N, ROSENBLUTH A, ROSENBLUTH M, *et al.*. Equation of state calculations by fast computing machines [J]. *Journal of Chemical Physics*, 1953, 21:1087-1092.
- [13] KIRKPATRICK S, GELATT C D, VECCHI M P. Optimization by simulated annealing [J]. *Science*, 1983, 220:671-680.

## 作者简介:



郭春(1986—),男,河南信阳人,博士研究生,2008年于浙江理工大学获得学士学位,主要从事真空紫外光学薄膜制备和性能检测的研究。Email: guochunyouxiang@126.com

## 导师简介:



李斌成(1966—),男,湖北天门人,研究员,博士生导师,1985年于合肥工业大学获得学士学位,1988年于电子科技大学获得硕士学位,1995年于武汉大学获得博士学位,主要从事光热技术和光学薄膜的研究。Email: bcli@ioe.ac.cn

(版权所有 未经许可 不得转载)