

## 透明红外硫系薄膜非均匀性检测及影响因素

姚玉明, 宋宝安, 肖传富, 戴世勋

引用本文:

姚玉明, 宋宝安, 肖传富, 等. 透明红外硫系薄膜非均匀性检测及影响因素[J]. *光学精密工程*, 2020, 28(5): 1005–1011.

YAO Yu-ming, SONG Bao-an, XIAO Chuan-fu, et al. Optical non-uniformity test of transparent infrared chalcogenide film and influencing factors[J]. *Optics and Precision Engineering*, 2020, 28(5): 1005–1011.

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.3788/OPE.20202805.1005>

## 您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

### 自组装法制备的亚波长纳米多孔二氧化硅薄膜

Sub-wavelength nano-porous silica anti-reflection coatings fabricated by dip coating method  
*光学精密工程*. 2015, 23(5): 1233–1239 <https://doi.org/10.3788/OPE.20152305.1233>

### 真空热处理对硫化锌薄膜光学与微结构特性的影响

Effects of vacuum annealing on optical and microstructure properties of zinc sulfide thin film  
*光学精密工程*. 2017, 25(8): 2038–2045 <https://doi.org/10.3788/OPE.20172508.2038>

### eXTP望远镜用W/Si多层膜

DW/Si multilayer for eXTP mission  
*光学精密工程*. 2017, 25(11): 2796–2802 <https://doi.org/10.3788/OPE.20172511.2796>

### 离子束溅射氧化钽薄膜的光学带隙特性

Characteristics of optical band gap of tantalum oxide thin film deposited by ion beam sputtering  
*光学精密工程*. 2017, 25(1): 21–27 <https://doi.org/10.3788/OPE.20172501.0021>

### 微机电火工品薄膜结构换能元

Film structure energy conversion components for MEMS initiators  
*光学精密工程*. 2018, 26(9): 2319–2325 <https://doi.org/10.3788/OPE.20182609.2319>

文章编号 1004-924X(2020)05-1005-07

# 透明红外硫系薄膜非均匀性检测及影响因素

姚玉明<sup>1,2</sup>, 宋宝安<sup>1,2\*</sup>, 肖传富<sup>1,2</sup>, 戴世勋<sup>2</sup>

(1. 宁波大学 信息科学与工程学院, 浙江 宁波 315211;

2. 宁波大学 浙江省光电探测材料与器件重点实验室, 浙江 宁波 315211)

**摘要:** 薄膜非均匀性的无损检测对于制备大面积高质量的红外透明薄膜尤为重要。针对红外薄膜光学均匀性难以获取的困难, 提出了一种同时获得单层透明红外薄膜厚度和折射率均匀性的无损检测方法。实验上, 通过磁控溅射法在二氧化硅衬底上制备了厚度约  $1.4 \mu\text{m}$  红外透明 Ge-Sb-Se 硫系薄膜, 然后在该薄膜上标定出 36 个  $80 \mu\text{m} \times 80 \mu\text{m}$  区域, 利用显微傅里叶红外光谱仪测得该 36 个区域的透射谱, 通过分段滤波的方法滤除背景噪声, 运用改进的 Swanepoel 方法计算得到了薄膜每一个区域的厚度和折射率, 进而精确获得该薄膜的厚度和折射率均匀性, 结果表明精度优于 0.5%。

**关键词:** 红外薄膜; 改进的 Swanepoel 方法; 光学均匀性; 无损检测

**中图分类号:** O439 **文献标识码:** A **doi:** 10.3788/OPE.20202805.1005

## Optical non-uniformity test of transparent infrared chalcogenide film and influencing factors

YAO Yu-ming<sup>1,2</sup>, SONG Bao-an<sup>1,2\*</sup>, XIAO Chuan-fu<sup>1,2</sup>, DAI Shi-xun<sup>2</sup>

(1. Faculty of Electrical Engineering and Computer Science,  
Ningbo University, Ningbo 315211, China;

2. Zhejiang Key Laboratory of Photoelectric Detection Materials and Devices,  
Ningbo University, Ningbo 315211, China)

\* Corresponding author, E-mail: songbaoan@nbu.edu.cn

**Abstract:** The non-destructive testing of the non-uniformity of films is important in the preparation of large-area, high-quality infrared transparent films. In this study, a method is proposed to obtain the thickness and refractive index non-uniformity of the film. In the experiments, an infrared Ge-Sb-Se chalcogenide film was prepared on a silicon dioxide substrate using magnetron sputtering. The transmission spectra of 36 areas with a size of  $80 \mu\text{m} \times 80 \mu\text{m}$  were measured using a microscopic Fourier infrared spectrometer. Further, the background noise was filtered out with the segmentation filtering method. Finally, the thickness and refractive index of each area were calculated using the improved Swanepoel method, and the non-uniformity of the film was accurately obtained by comparing the test results from different areas. The results indicate that the calculation accuracy of the film non-uniformity is better than 0.5%.

**Key words:** infrared film; improved Swanepoel method; optical non-uniformity; non-destructive testing

收稿日期: 2019-11-19; 修订日期: 2019-12-19.

基金项目: 浙江省自然科学基金资助项目(No. LY19F050003); 宁波大学王宽诚幸福基金资助项目

## 1 引言

随着红外器件向着小型化与集成化方向发展,红外薄膜在光流控芯片、三维光子晶体、微腔激光器、高密度光存储、光传感等领域应用越来越广泛<sup>[1-7]</sup>。均匀性良好的薄膜是微光学器件高精度制备和规模化生产的基础。红外薄膜光学均匀性的高精度无损检测具有重要的意义。

薄膜光学均匀性通常指厚度均匀性和折射率均匀性。测试薄膜厚度和折射率的方法很多,包括 Cauchy 方程法、Sellmeier 关系法、包络法、椭圆偏振法<sup>[8-9]</sup>等。Cauchy 方程法是一种经验型方法,偏差较大。Sellmeier 关系法计算得到的光学常数和薄膜厚度误差较大,且误差分析情况复杂。椭圆偏振法不能直接得到清晰的表达式,需要利用计算机求解一个超越方程,要进行数学建模,模型的准确与否直接影响最终的计算精度。基于薄膜透射谱线的包络法由 Swanepoel 提出<sup>[10]</sup>,该方法利用薄膜的透射曲线中两个相邻的波峰或波谷位置对应的波长和峰值包络数据计算薄膜的厚度和折射率,简单有效,但在强吸收区域会出现厚度和折射率明显异常的计算结果。

针对上述问题,本文利用改进的 Swanepoel 方法,通过测试薄膜多个不同区域的红外透射谱,进而计算和表征薄膜的非均匀性,该方法能够准确测量红外透明薄膜的均匀性。

## 2 基础原理

红外薄膜光学均匀性测试原理如图 1 所示。首先测试薄膜不同区域的红外透射谱,然后利用

改进的 Swanepoel 方法计算薄膜上不同区域的折射率<sup>[11]</sup>,最后利用不同区域的测试结果计算得到薄膜的均匀性。

如图 1 所示,透明衬底上薄膜的厚度为  $d$ ,复折射率  $N=n-ik$ ,  $n$  是折射率,  $k$  是消光系数,可以表示为吸收系数  $\alpha$  的函数。透明衬底厚度比薄膜的厚度  $d$  大几个数量级,衬底折射率为  $s$ ,吸收系数  $\alpha_s=0$ 。透过率  $T$  是一个具有多个自变量的函数,它可以表示为:

$$T=T(\lambda, s, n, d, \alpha). \quad (1)$$

式中,波长  $\lambda$  与衬底折射率  $s$  为已知数据,只要设法建立 3 个方程即可解出 3 个未知参数  $n$ ,  $d$ ,  $\alpha$ 。实验中,在透射谱线基础上得到上下两条包络线  $T_M$  和  $T_m$ ,然后结合干涉方程  $2n_2\bar{d}=m\lambda$  便组成了 3 个方程,进而可以求解得到 3 个未知数  $n$ ,  $d$ ,  $\alpha$ 。求解得到折射率为:

$$n = \sqrt{2s \frac{T_M - T_m}{T_M T_m} + \frac{s^2 + 1}{2}} + \sqrt{\left(2s \frac{T_M - T_m}{T_M T_m} + \frac{s^2 + 1}{2}\right)^2 - s^2}. \quad (2)$$

薄膜厚度  $d_1$  为:

$$d_1 = \frac{\lambda_1 \lambda_2}{2(\lambda_1 n_2 - \lambda_2 n_1)}, \quad (3)$$

其中:  $\lambda_1, \lambda_2$  为相邻两个峰值波长,  $n_1, n_2$  为对应的折射率。薄膜吸收系数  $\alpha$  为:

$$\alpha = -\frac{\ln x}{d}, \quad (4)$$

其中:

$$x = \frac{E_M - [E_M^2 - (n^2 - 1)^3 (n^2 - s^4)]^{\frac{1}{2}}}{(n - 1)^3 (n - s^2)}, \quad (5)$$

式中:

$$E_M = \frac{8n^2 s}{T_M} + (n^2 - 1)(n^2 - s^2). \quad (6)$$

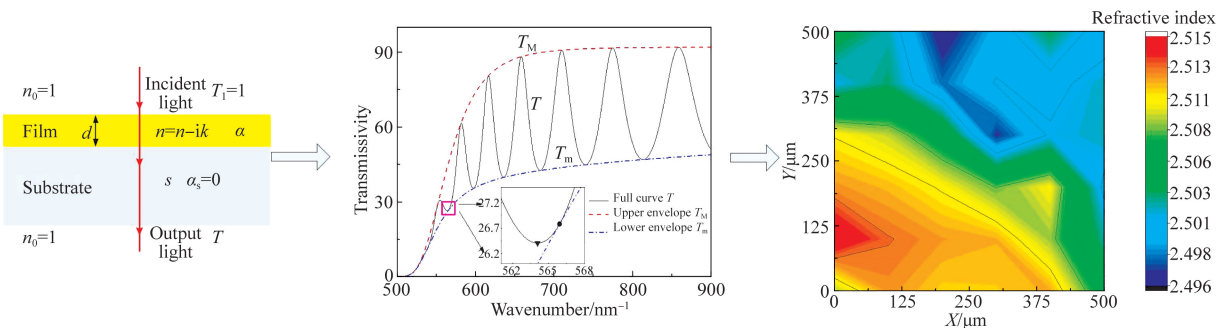


图 1 单层透明薄膜均匀性获取方法示意图

Fig. 1 Schematic of obtaining uniformity of single transparent film

### 3 实验

红外 Ge-Sb-Se 硫系薄膜是利用磁控溅射法<sup>[12-13]</sup>在二氧化硅玻璃衬底上制备而成。制备过程中,真空腔内的压力 $\leq 10^{-5}$  Pa 且温度保持在 25 °C,溅射功率为 20~40 W,衬底的旋转速度为 5 r/min。为了使薄膜结构更加稳定,将制备好的薄膜放入退火炉,在转化温度( $T_g$ )以下 40 °C 退火 15 h。

透射光谱使用带有 HYPERION 3000 显微成像和三维移动平台的显微傅里叶红外光谱仪 VERTEX 70 测得<sup>[14-15]</sup>,透射谱测量误差是  $\pm 0.1\%$ ,测试中显微镜的工作孔径为 20  $\mu\text{m}$ 。在精确定位薄膜的初始测量点并精确校准平台的平移方向后,通过设置平台的运动轨迹,自动测量了 36 个微小区域的透射光谱,光谱分辨率为 0.2  $\text{cm}^{-1}$ ,结果如图 2 所示。

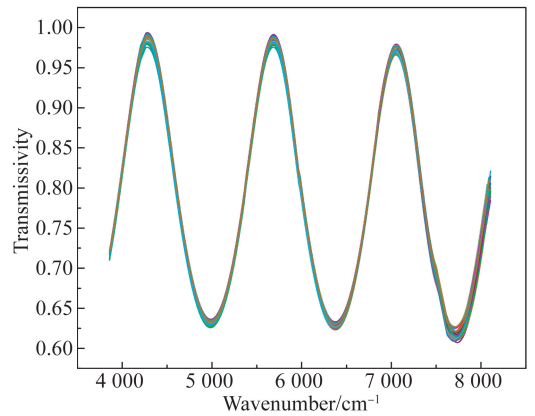


图 2 薄膜 36 个不同位置处的透过光谱  
Fig. 2 Transmission spectra of thin films in 36 different areas

### 4 实验结果

由图 2 中数据计算得到薄膜的折射率和厚度,其中一个测试区域的测试数据及计算结果列于表 1。

表 1 薄膜的折射率及厚度

Tab. 1 Refractive index and thickness of thin film

Wavenumber/ $\text{cm}^{-1}$	$\lambda/\text{nm}$	$T_M$	$T_m$	$n_1$	$d_1/\text{nm}$	$m$	$[m]$	$d_2/\text{nm}$	$n_2$
7 723	1 294.8	0.962 6	0.615 1	2.532		5.56	5.5	1 405.7	2.545
7 054	1 417.6	0.968 8	0.620 2	2.524		5.06	5	1 403.9	2.533
6 374	1 568.8	0.975 1	0.624 2	2.519	1 427.9	4.57	4.5	1 400.9	2.523
5 687	1 758.3	0.979 7	0.626 3	2.518	1 436.0	4.07	4	1 396.1	2.513
4 987	2 005.2	0.981 2	0.627 2	2.518	1 427.3	3.57	3.5	1 393.6	2.508
4 279	2 336.9	0.980 8	0.628 1	2.514	1 402.1	3.06	3	1 394.1	2.505

\* 最后求出  $d_2$  的平均值为 1 402.0 nm,  $[m]$  表示将  $m$  取半整数。

利用改进的 Swanepoel 方法计算得到薄膜上 36 个测试区域的厚度数据,如图 3(a)所示,薄膜的平均厚度约为 1 400.7 nm,标准差约为 2.8 nm。为了验

证计算的准确性,同时利用台阶仪测试了薄膜厚度,结果如图 3(b)所示,薄膜厚度约为 1 400.7 nm,标准差约为 8.3 nm,与计算结果基本吻合。

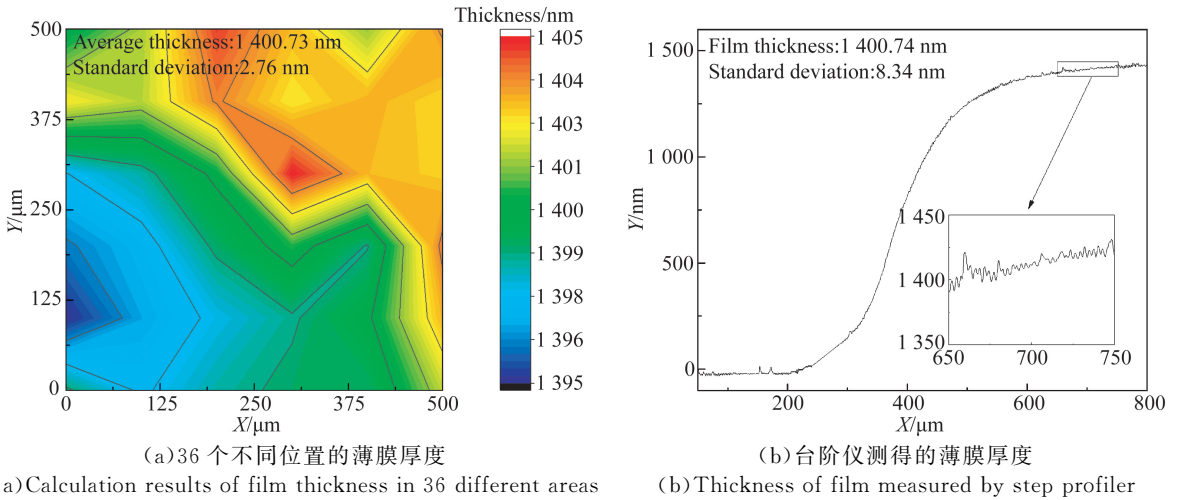
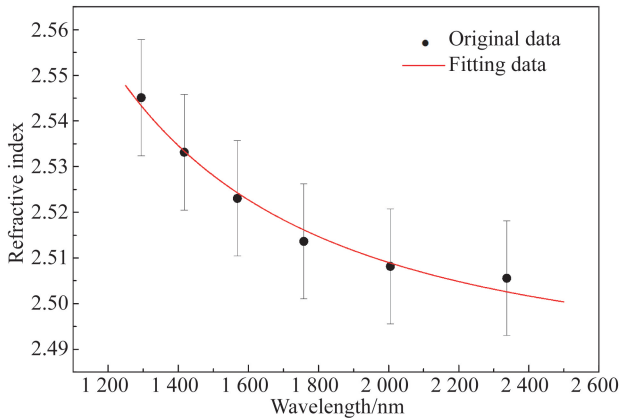


图 3 两种不同方法获得的薄膜厚度

Fig. 3 Film thickness obtained using two different methods

通过该二阶 Cauchy 模型拟合得到薄膜折射随波长的变化曲线如图 4(a) 所示<sup>[11]</sup>, 折射率随着波长的增加而减小, 每个点的折射率误差优于

0.5%。薄膜在波长  $2\ \mu\text{m}$  处各个测试区域的折射率如图 4(b) 所示, 薄膜折射率均匀性优于 0.8%。除此之外, 该薄膜在  $2\ \mu\text{m}$  处吸收系数接近为 0。



(a) 折射率随波长的变化

(a) Refractive index changes with wavelength

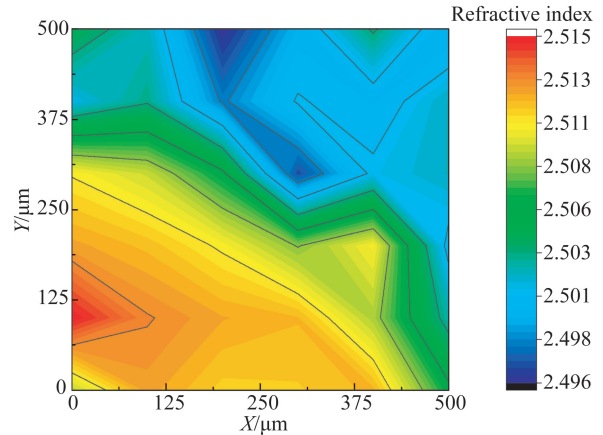
(b) 波长  $2\ \mu\text{m}$  处的折射率均匀性(b) Refractive index uniformity at wavelength of  $2\ \mu\text{m}$ 

图 4 薄膜的折射率及均匀性

Fig. 4 Refractive index and uniformity of film

## 5 讨论与分析

实验测得红外透射谱(图 2)与运用单层膜模型计算得到的透射光谱曲线相似, 因此, 薄膜在厚度方向(Z 方向)的均匀性良好, 本文只讨论薄膜在表面不同区域的折射率非均匀性, 并将分析透射谱线噪声、表面粗糙度、薄膜厚度和折射率精度 4 个因素对薄膜均匀性检测的影响。

### 5.1 红外透射谱线噪声影响

为了准确获得薄膜光学常数, 需要精确滤除

待测薄膜透过率中的噪声, 常用的滤波方法 Savitaky-Golay, Adjacent Averaging, Percentile Filter 和 FFT Filter<sup>[15-19]</sup>等会导致滤波后的透射曲线出现不同程度的失真, 进而使得薄膜光学常数的计算出现较大误差。为此, 本文提出了一种分段滤波方法。首先, 将薄膜的透射光谱曲线以半高宽为界限分成若干个波峰和波谷段; 然后, 利用函数模型  $T = a \cos(n/\lambda) + b$  分别对每一段波峰和波谷数据进行拟合, 获取每一段的拟合残差; 将它与设定的残差阈值比较, 若大于阈值, 则将此段数据再按半高宽重新分段拟合, 直到所有

拟合残差小于阈值为止;最后,再将拟合后的数据拼接到一起,即可精确滤除透射曲线中的噪声得到一条理想的光滑透射光谱曲线。

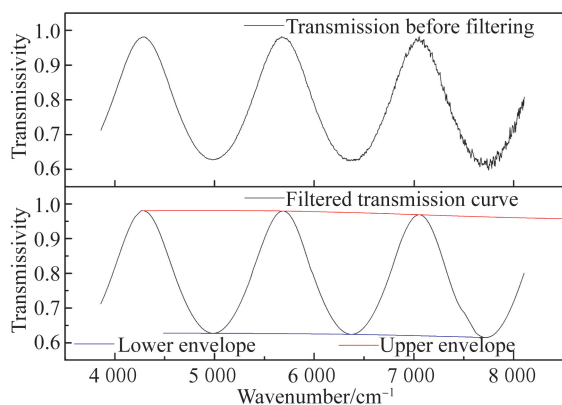


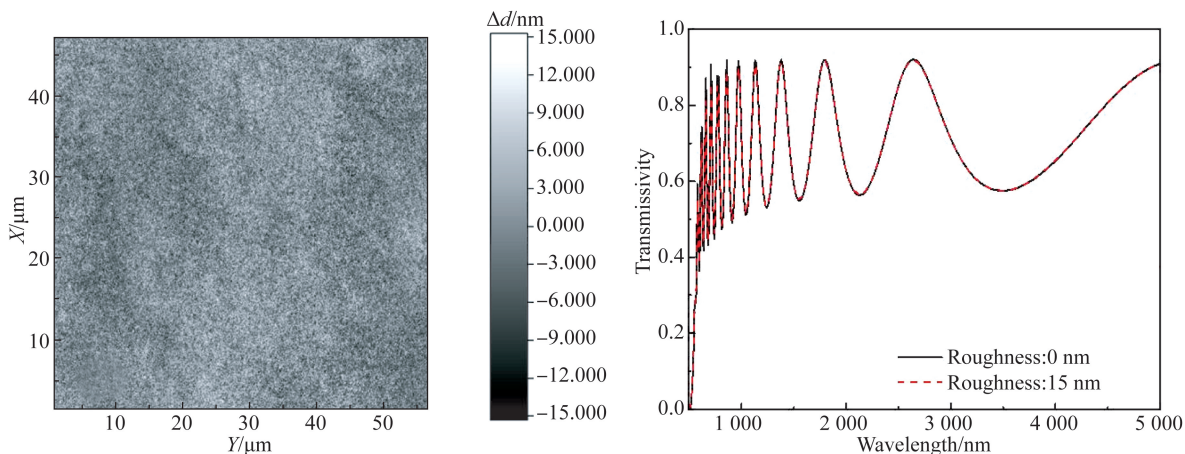
图 5 滤波前后薄膜在中红外波段的透射谱

Fig. 5 Transmission spectra of film in mid-infrared band before and after filtering

分段滤波前后薄膜的透射谱如图 5 所示。由图可知,原始数据存在一定的噪声,分段滤波后基本上消除了噪声的影响。利用滤波后的数据,运用改进的 Swanepoel 方法准确绘制出透射谱的上下包络曲线,进而精确计算得到薄膜的厚度和折射率。

### 5.2 薄膜表面粗糙度影响

这里使用三维轮廓仪测试了薄膜的表面粗糙度,计算了粗糙度对薄膜透射谱的影响,如图 6 所示。由图 6(a)可知,薄膜表面起伏在 15 nm 以内。图 6(b)显示,当测试波长较短,处于强吸收与中等吸收区时,薄膜的粗糙度对透射谱有较大的影响,透过率相差约 0.7%;随着测试波长的增加,在弱吸收区域,粗糙度影响减小,透过率差值仅为 0.1%。当测试波长处于中红外透明区域时,粗糙度为 15 nm 与粗糙度为 0 的透射谱几乎完全重合。本文测试中红外区域的折射率,故薄膜表面 ±15 nm 起伏的影响可以忽略。



(a) 轮廓仪测得薄膜表面粗糙度

(a) Surface roughness of film measured by profiler

(b) 粗糙度对透射谱的影响

(b) Effect of roughness on transmission spectrum

图 6 薄膜表面粗糙度对测量结果的影响

Fig. 6 Effect of film surface roughness on measurement results

### 5.3 薄膜厚度的影响

准确获取薄膜的厚度有利于提高薄膜折射率的计算精度,计算过程中利用循环迭代的方法提高薄膜厚度的计算精度。利用改进的 Swanepoel 方法,基于透射谱上下包络线第一次得到各个波长处厚度  $d_1$  的值比较离散,不够精确。因此我们利用第一次计算的厚度  $d_1$  的均值和透射谱峰谷处的折射率  $n_1$  来确定干涉级次  $m$ ,利用切点处干涉级次为整数或半整数的特征把计算得到的干涉级次  $m$  取整数或者半整数,进一步使用这些取整

或半整数的  $m$  值以及  $n_1$  的值代入干涉方程计算厚度  $d_2$  的值,利用  $d_2$  的均值进而可以计算得到更为精确的折射率  $n_2$ 。表 1 中数据显示  $d_1 = (1\ 423 \pm 20)$  nm,精度为 2%, $d_2 = (1\ 399 \pm 5)$  nm,精度为 0.4%,结果表明优化后的  $d_2$  精度更高。

### 5.4 折射率精度分析

折射率的测量误差主要来源于透射光谱曲线的测量误差和计算折射率的方法误差。所使用的光谱仪透射谱的测量误差是 ±0.1%,对应折射率的计算误差低于 0.1%。误差主要来源于分段滤

波、包络选取和拟合模型,利用带有高斯噪声的模拟透过率曲线计算薄膜折射率,结果表明误差约为 0.2%。综上所述,折射率的测量精度优于 0.5%。

## 6 结 论

本文系统研究了透明红外硫系薄膜的均匀性,提出了一种利用薄膜多个区域的红外透射谱与改进的 Swanepoel 方法对透明红外薄膜非均匀性进行检测与表征的方法。首先,在透明二氧化硅衬底

上利用磁控溅射法制备了 Ge-Sb-Se 透明薄膜,利用显微傅里叶红外光谱仪标定和测试了 36 个  $80\ \mu\text{m}\times 80\ \mu\text{m}$  区域的红外透射光谱。然后,利用上述方法计算了该薄膜的厚度和折射率均匀性,分析了透射谱噪声、薄膜表面粗糙度与薄膜厚度对计算结果的影响,通过分段滤波法、红外区域透过率测量以及循环迭代算法可以有效减小这些因素的影响。结果表明,薄膜厚度为 1 400.7 nm,标准差为 2.8 nm,与台阶仪的测试结果相吻合。薄膜折射率均匀性优于 0.8%,每个测试区域的折射率误差优于 0.5%。

### 参考文献:

- [1] ZHANG Z Y, CHEN F, NIE Q H, *et al.*. Research progress on nonlinear application of chalcogenide optical waveguide [J]. *Laser & Optoelectronics Progress*, 2014, 51(12): 120003.
- [2] BUREAU B, ZHANG X H, SMEKTALA F, *et al.*. Recent advances in chalcogenide glasses [J]. *Journal of Non-Crystalline Solids*, 2004, 345-346: 276-283.
- [3] CHARPENTIER F, TROLES J, COULOMBIER Q, *et al.*. CO<sub>2</sub> detection using microstructured chalcogenide fibers [J]. *Sensor Letters*, 2009, 7(5): 745-749.
- [4] NAZABAL V, CATHELINAUD M, SHEN W D, *et al.*. Chalcogenide coatings of Ge<sub>15</sub>Sb<sub>20</sub>S<sub>65</sub> and Te<sub>20</sub>As<sub>30</sub>Se<sub>50</sub> [J]. *Applied Optics*, 2008, 47(13): C114-C123.
- [5] 魏巍, 张威, 孔慧, 等. 薄膜 Lamb 波传感器用于胃蛋白酶原 I 检测 [J]. *光学精密工程*, 2018, 26(9): 2281-2289.  
WEI W, ZHANG W, KONG H, *et al.*. Thin film Lamb wave sensors for pepsinogen I detection [J]. *Opt. Precision Eng.*, 2018, 26(9): 2281-2289. (in Chinese)
- [6] 毛思达, 邹永刚, 范杰, 等. 离子后处理对 TiO<sub>2</sub> 光学薄膜及损伤特性的影响 [J]. *光学精密工程*, 2019, 27(7): 1451-1457.  
MAO S D, ZOU Y G, FAN J, *et al.*. Influence of plasma treatment on optical and damage properties of TiO<sub>2</sub> thin films [J]. *Opt. Precision Eng.*, 2019, 27(7): 1451-1457. (in Chinese)
- [7] 葛城显, 吴振森, 白靖, 等. 微粗糙光学表面与多个镶嵌粒子差值散射场特性 [J]. *光学精密工程*, 2018, 26(2): 268-275.  
GE CH X, WU ZH S, BAI J, *et al.*. Difference field scattering properties between multiple inlaid redundant particles and slightly rough optical surface [J]. *Opt. Precision Eng.*, 2018, 26(2): 268-275. (in Chinese)
- [8] AMIOTTI M, LANDGREN G. Ellipsometric determination of thickness and refractive index at 1.3, 1.55, and 1.7  $\mu\text{m}$  for In<sub>(1-x)</sub>Ga<sub>x</sub>As<sub>y</sub>P<sub>(1-y)</sub> films on InP [J]. *Journal of Applied Physics*, 1993, 73(6): 2965-2971.
- [9] TATIAN B. Fitting refractive-index data with the Sellmeier dispersion formula [J]. *Applied Optics*, 1984, 23(24): 4477-4485.
- [10] SWANEPOEL R. Determination of surface roughness and optical constants of inhomogeneous amorphous silicon films [J]. *Journal of Physics E: Scientific Instruments*, 1984, 17(10): 896-903.
- [11] JIN Y L, SONG B A, JIA Z T, *et al.*. Improvement of Swanepoel method for deriving the thickness and the optical properties of chalcogenide thin films [J]. *Optics Express*, 2017, 25(1): 440-451.
- [12] FU Y Z, CHENG G G, QUAN W. Influence of sputtering power and annealing temperature on internal stress of GeSbTe phase-change films [J]. *Materials Science and Technology*, 2012, 20(2): 145-148.
- [13] ZONG S F, SHEN X, XU T F, *et al.*. Thermal-induced optical changes in the amorphous Ge<sub>20</sub>Sb<sub>15</sub>Se<sub>65</sub> film [J]. *Acta Physica Sinica*, 2013, 62(9): 096801.
- [14] CHEN Y Y, ZOU C N, MASTALERZ M, *et al.*. Applications of micro-Fourier transform infrared spectroscopy (FTIR) in the geological sciences: a review [J]. *International Journal of Molecular Sciences*, 2015, 16(12): 30223-30250.
- [15] ZIEBAPALUS J. Application of micro-Fourier transform infrared spectroscopy to the examina-

tion of paint samples [J]. *Journal of Molecular Structure*, 1999, 511: 327-335.

- [16] AFZAL M Z, KRÄMER M, BUKHARI S S, *et al.*. *Robust Binarization of Stereo and Monocular Document Images Using Percentile Filter* [M]. *Camera-Based Document Analysis and Recognition*. Cham: Springer International Publishing, 2014: 139-149.
- [17] CHEN J, JONSSON P, TAMURA M, *et al.*. A simple method for reconstructing a high-quality NDVI time-series data set based on the Savitzky -

Golay filter [J]. *Remote Sensing of Environment*, 2004, 91(3): 332-344.

- [18] HOANG T, VANGALA R R. Method of tuning a ceramic duplex filter using an averaging step: U. S. Patent 5,528,204[P]. 1996-06-18.
- [19] WANG S C, PATENAUDE F, INKOL R. Upper and lower bounds for the threshold of the FFT filter bank-based summation CFAR detector [C]. 2006 *IEEE International Conference on Acoustics Speech and Signal Processing Proceedings*, 14-19 May 2006, Toulouse, France, 2006: III.

#### 作者简介:



姚玉明(1998—),男,河南郑州人,主要从事红外光学薄膜光学性质方面的研究。E-mail: 1025378785@qq.com

#### 通讯作者:



宋宝安(1980—),男,山西平遥人,副教授,硕士生导师,2003年、2005年、2009年于哈尔滨工业大学分别获得学士、硕士、博士学位,主要从事激光技术、红外材料与器件、结构光成像等方面的研究。E-mail: songbaoan@nbu.edu.cn