

07;11;12

Определение оптических свойств и толщины нанослоев по угловым зависимостям коэффициента отражения

© Д.И. Биленко, А.А. Сагайдачный, В.В. Галушка, В.П. Полянская

Саратовский государственный университет им. Н.Г. Чернышевского,
410012 Саратов, Россия
e-mail: bil@sgu.ru

(Поступило в Редакцию 28 мая 2009 г. В окончательной редакции 12 февраля 2010 г.)

Исследованы возможности многопараметрового определения свойств структур на основе данных о зависимости коэффициентов отражения поляризованного излучения R_p , R_s и отношения R_p/R_s от угла падения θ , а также на основе угловой зависимости $1/R_p(\Delta R/\Delta\theta)$. Данные натуральных и вычислительных экспериментов показали высокую чувствительность угловой зависимости коэффициента отражения $R_p(\theta)$ к значениям оптических констант и толщине слоистых структур. Количественные результаты многопараметровых измерений проверены независимым методом спектральной эллисометрии. Установлены возможности многопараметрового определения свойств и толщины нанометровых диэлектрических, металлических и полупроводниковых слоев на различных подложках и свойств подложек в таких структурах.

Введение

По мере развития нанотехнологии все более необходимыми становятся методы неразрушающего, многопараметрового, экспрессного, локального определения свойств структур. Для наиболее распространенных слоистых пленочных структур к значимым свойствам следует отнести толщину слоя и базовые оптические свойства — показатель преломления n и показатель поглощения (коэффициент экстинкции) k . Это связано, с одной стороны, с информативностью этих параметров, а с другой — с существенной зависимостью свойств слоев от их толщины d , предыстории, условий получения, внешней среды и воздействий. Так, например, при изменении толщины слоя платины от 5 до 50 nm на длине волны 600 nm значение показателя поглощения k увеличивается от 0.6 до 2.7, а показателя преломления n — уменьшается от 3.5 до 2.7, для пленок селена на длине волны 720 nm при изменении толщины от 5 до 15 nm значение показателя преломления уменьшается от 40 до 10 (в 4 раза!) [1]. Зависимости $n(d)$ и $k(d)$ тонких слоев, полученные на одной длине волны, не являются постоянными и могут иметь различный вид, прежде всего вследствие различий в технологических процессах получения структур [1]. Поэтому использование значения какого-либо параметра из табличных, литературных данных может быть ошибочным, ведущим к существенным погрешностям в диагностике других свойств.

Выходом из данной ситуации является определение комплекса связанных параметров в рамках единого метода и одной измерительной системы, позволяющих провести определение ряда свойств за один акт измерения. Однако в настоящее время оптические методы, позволяющие одновременно определять показатель преломления, показатель поглощения и толщину для поглощающих и непоглощающих веществ, разработаны

недостаточно. Широко известные угловые методики, описанные в [2], применялись лишь к монолитным образцам для определения двух параметров — n и k . В недавних исследованиях размерных эффектов в тонких пленках золота [3] использовалась угловая зависимость коэффициента отражения в широком диапазоне углов для определения только двух параметров слоя n и k , а толщина слоя, d , определялась независимым методом. В работе [3] также отмечалась более высокая точность расчета параметров по угловой зависимости коэффициента отражения поляризованного излучения, чем по отражению и пропусканию при нормальном падении излучения.

В настоящей работе исследованы различные возможности многопараметрового определения свойств структур на основе использования данных о зависимости коэффициентов отражения p - и s -поляризованного излучения R_p и R_s и их отношения R_p/R_s от угла падения θ , а также на основе угловой зависимости $1/R_p(\Delta R/\Delta\theta)$. Приведены результаты натуральных и вычислительных экспериментов для структур различного типа, оцениваются точностные характеристики, предлагаются варианты экспериментальной реализации метода.

Теоретический анализ

Задачей анализа являлось выяснение возможностей комплексного определения показателя преломления n , показателя поглощения (коэффициента экстинкции) k слоя и/или подложки, а также нанометровой толщины слоев d по угловой зависимости отраженного излучения.

Функциональная связь между совокупностью данных параметров и угловой зависимостью коэффициента отражения устанавливается матричным методом, в котором между слоями вводятся прослойки нулевой толщины с оптическими свойствами внешней среды [4,5]. Такой подход позволяет получить обобщенные формулы для

энергетического коэффициента отражения многослойных структур

$$R_{PN} = \left| \frac{r_{PN} + \frac{r_{PN-1} - r_{PN}}{1 - r_{PN-1} r_{PN}} \exp(-2iZ_N)}{1 + r_{PN} \frac{r_{PN-1} - r_{PN}}{1 - r_{PN-1} r_{PN}} \exp(-2iZ_N)} \right|^2, \quad (1)$$

где r_{PN} , r_{PN-1} — коэффициенты Френеля для границы раздела N - и $N-1$ -го слоя с внешней средой для p -поляризованного излучения; Z_N — фазовый сдвиг при отражении от границы раздела N - и $N-1$ -го слоя. Выражения для коэффициентов Френеля и фазового сдвига имеют вид

$$r_{PN} = \frac{(n_N + k_N)^2 \cos(\theta) - n_m^2 \sqrt{(n_N + k_N)^2 - n_m^2 \sin^2(\theta)}}{(n_N + k_N)^2 \cos(\theta) + n_m^2 \sqrt{(n_N + k_N)^2 - n_m^2 \sin^2(\theta)}}, \quad (2)$$

$$Z_N = \frac{\omega d_N \sqrt{(n_N + k_N)^2 - n_m^2 \sin^2(\theta)}}{c}, \quad (3)$$

где n_m — показатель преломления внешней среды ($k_m = 0$); n_N , k_N — показатель преломления и поглощения N -го слоя соответственно; θ — угол падения излучения; ω — частота падающего излучения; d_N — толщина N -го слоя; c — скорость света.

В прямой задаче по данным соотношениям рассчитывалась угловая зависимость коэффициентов отражения при заданных значениях длины волны излучения λ , толщины слоев, а также комплексных показателях преломления подложки, слоев и внешней среды. В соответствии с такой математической моделью вид угловой зависимости коэффициента отражения определяется тремя комплексами искоемых параметров $R_p(\theta) = f(\mathbf{n}_L, \mathbf{k}_L, \mathbf{d}_L, \theta)$, где $\mathbf{n}_L = (n_1, n_2, \dots, n_N)$, $\mathbf{k}_L = (k_1, k_2, \dots, k_N)$, $\mathbf{d}_L = (d_1, d_2, \dots, d_N)$ — обозначение комплекса свойств N слоев структуры.

В обратной задаче по полученным экспериментально зависимостям $R_p(\theta)$, $R_s(\theta)$ и отношению $R_p(\theta)/R_s(\theta)$ или $1/R_p \Delta R / \Delta \theta$ определялись оптические параметры и толщина слоев. Расчет параметров проводился с использованием метода наименьших квадратов минимизацией суммы квадратов невязок, например

$$S(\mathbf{n}_L, \mathbf{k}_L, \mathbf{d}_L) = \sum_{i=1}^{i_{\max}} [R_{p_{\text{exp}}}(\theta_i) - R_{p_{\text{calc}}}(\theta_i, \mathbf{n}_L, \mathbf{k}_L, \mathbf{d}_L)]^2, \quad (4)$$

где i — номер угла падения излучения, i_{\max} — количество углов, при которых проводятся измерения, $R_{p_{\text{exp}}}(\theta_i)$ — экспериментальное значение коэффициента отражения для угла θ_i , $R_{p_{\text{calc}}}(\theta_i, \mathbf{n}_L, \mathbf{k}_L, \mathbf{d}_L)$ — значение коэффициента отражения для угла θ_i , рассчитанное в прямой задаче по формулам (1)–(3). Поиск параметров проводился из заданного диапазона с шагом для n и k , равном 0.01, для $d = 0.1$ nm. Шаг изменения параметров соответствовал разрешающей способности метода, оцененной по результатам проводимых вычислительных

Таблица 1. Результаты статистического анализа для структуры SiO_2 на Si при использовании функции R_d

Параметры слоя SiO_2	Значения толщин слоя, nm			
	5	10	15	20
n^{av}	1.388	1.421	1.434	1.445
n^-	1.364	1.414	1.422	1.439
n^+	1.412	1.429	1.447	1.452
d^{av} , nm	5.54	10.39	15.32	20.13
d^- , nm	5.36	10.31	15.12	19.98
d^+ , nm	5.73	10.47	15.52	20.28

Примечание. n^- , n^+ — соответственно нижние и верхние границы доверительного интервала показателя преломления слоя; n^{av} — среднее значение показателя преломления слоя; d^- , d^+ — соответственно нижние и верхние границы доверительного интервала толщины слоя; d^{av} — среднее значение толщины слоя. Доверительная вероятность 0.99, длина волны излучения $\lambda = 632.8$ nm.

экспериментов. Набор значений \mathbf{n}_L , \mathbf{k}_L , \mathbf{d}_L , минимизирующий функцию (4), представлял собой искоемые параметры.

Вычислительные эксперименты проводились для оценки чувствительности метода к определяемым параметрам структур и степени влияния случайных ошибок на результаты эксперимента. Рассматривались структуры с различным сочетанием свойств поглощающих и непоглощающих слоев и подложек. Экспериментальные данные моделировались добавлением к расчетной зависимости ошибок, распределенных по нормальному закону с задаваемым средним квадратическим отклонением, соответствующим уровню шумов используемой измерительной аппаратуры. Полученная таким образом угловая зависимость использовалась при решении обратной задачи для нахождения неизвестных параметров структуры. Погрешности оценивались сравнением данных, задаваемых в прямой задаче, и параметров, определенных при решении обратной задачи.

Для устранения мультипликативной и уменьшения аддитивной погрешностей исследовалась возможность использования логарифмической производной коэффициента отражения, записанной в конечно-разностной форме

$$R_d(\theta_i) = \frac{\Delta R(\theta_{i,i-1})}{R(\theta_i) \Delta \theta_{i,i-1}}, \quad i = 2, \dots, N, \quad (5)$$

где $\Delta R(\theta_{i,i-1})$ — разность коэффициентов отражения для i -го и $i-1$ -го угла падения; $\theta_{i,i-1}$ — шаг изменения угла; N — количество углов падения.

Проводился статистический анализ погрешностей при 15 параллельных вычислительных экспериментах с применением критерия Стьюдента. В табл. 1 приведены результаты, характерные для структур с непоглощающим слоем. Приведены данные для структур SiO_2 на Si-подложке толщиной 50–200 nm, показатель преломления

Таблица 2. Результаты определения параметров двуслойной структуры Si₃N₄–SiO₂ на Si-подложке ($\lambda = 632.8$ nm) по зависимости $R_p(\theta)$

Вещество слоя	n	Δn	d , nm	Δd , nm
Si ₃ N ₄	1.6	0.017	5	0.44
SiO ₂	1.46	0.01	5	0.53

Примечание. n, d — значения показателя преломления и толщины слоя соответственно; $\Delta n, \Delta d$ — абсолютные погрешности определения значений показателя преломления и толщины слоя соответственно.

слоя SiO₂ принимался равным $n = 1.45$ при среднем квадратическом отклонении величины R , равном 0.005.

Приведенные данные для прозрачного слоя SiO₂ показывают уменьшение доверительного интервала и соответственно погрешности метода с увеличением толщины слоя.

Исследование возможностей определения свойств структур с поглощающим слоем по $R_p(\theta)$ на примере структуры Ag₂S–SiO₂ в диапазоне значений толщины слоев Ag₂S 20–50 nm показало, что погрешности определения толщины слоя составляют 0.1 nm, показателей преломления слоя — 0.002, показателей поглощения слоя — 0.001 (при $n = 2.67, k = 0.91, \lambda = 632.8$ nm).

Значения абсолютных погрешностей определения параметров двуслойной структуры при внесении погрешности в $R_p(\theta)$ со средним квадратическим отклонением $\sigma = 0.005$ приведены в табл. 2.

Результаты вычислительных экспериментов с двуслойной структурой показывают возможность определения заданных параметров n и d не только верхнего, но и нижнего слоя. Для однослойной структуры становится возможным определение свойств и слоя, и подложки.

Результаты вычислительных экспериментов по описанной схеме позволили провести сопоставление угловых методик с использованием коэффициентов отражения p -поляризованного излучения (R_p), коэффициентов отражения s -поляризованного излучения (R_s), их отношения R_p/R_s и функции R_d . Установлено, что использование зависимостей $R_p(\theta)$ и $R_d(\theta)$ p -поляризованного излучения имеет преимущества в точности определения параметров по сравнению с использованием зависимости $R_s(\theta)$ s -поляризованного излучения. Это объясняется более резкой зависимостью функции $R_p(\theta)$ в области угла Брюстера при различных значениях толщины и оптических констант слоев. Эффективность конкретной методики может быть предварительно определена для заданного типа структуры, величины аддитивной, мультипликативной погрешностей и возможностей их предварительного определения.

Проведенные вычислительные эксперименты позволили сопоставить результаты использования рассматриваемой методики с результатами ряда ранее описанных. Известны методы определения оптических констант n

и k по анализу отражения наклонно падающего излучения [2]. Часть методов основана на измерении отражения при двух углах падения и выбранной поляризации, другая часть — на измерении отражения на одном угле, например угле Брюстера, при двух видах поляризации R_p и R_s . По числовым данным таких измерений можно составить систему, в которой число уравнений равно числу неизвестных, т. е. систему из двух уравнений с двумя неизвестными. В нашем случае измерения проводятся в широком диапазоне углов и каждая точка на угловой зависимости $R(\theta)$ дает независимое уравнение относительно трех искоемых величин n, k, d , т. е. экспериментальные данные избыточны, а система уравнений является переопределенной. Решение таких переопределенных систем уравнений можно направить на повышение точности и надежности математической обработки экспериментальных данных. Однако использование для решения систем численных методов минимизации может давать неоднозначные результаты, так как в случае угловой зависимости коэффициента отражения минимизирующая функция часто является многоэкстремальной.

При выборе градиентных методов минимизации ситуация усложняется необходимостью указания заранее неизвестной начальной точки приближения для попадания в глобальный минимум. Используемый нами прямой поиск минимума функционала (4) с подстановкой параметров из некоторого диапазона не требует задания начальной точки приближения, позволяет использовать одновременно все точки угловой зависимости и определять глобальный минимум, соответствующий искомому оптическим параметрам и толщине слоев исследуемой структуры. Адекватность найденных параметров исследуемой структуре может оцениваться по минимальному значению суммы квадратов невязок S . В ходе вычислительных экспериментов находится ожидаемое значение невязки, используемое в дальнейшем при анализе соответствия модели исследуемой структуре. Так, например, для исследованных структур с поглощающими и не поглощающими слоями, имеющими толщину порядка десятков нанометров, суммы квадратов невязок S в минимуме не превышали $9 \cdot 10^{-4}$ при $\sigma = 0.005$ и суммирования по 90 точкам.

Экспериментальная часть

Экспериментальное измерение угловой зависимости коэффициента отражения проводилось по схеме, приведенной на рис. 1, а. Излучение от He–Ne-лазера ($\lambda = 632.8$ nm) (1) проходит через первый поляризатор (2), предназначенный для регулирования интенсивности падающего излучения с целью обеспечения линейного режима работы фотоприемника. Положение второго поляризатора (3) обеспечивает p -поляризацию проходящего излучения. Далее излучение проходит через диафрагму (4) и полупрозрачное зеркало (5), от которо-

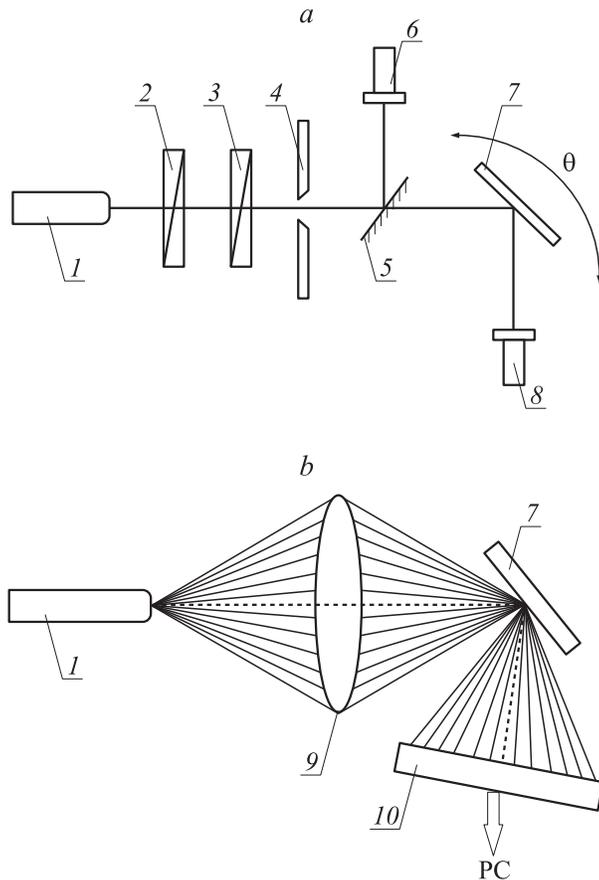


Рис. 1. Схема измерительной установки: *a* — измерения с использованием гониометра, *b* — параллельные угловые измерения. 1 — лазер; 2, 3 — поляризаторы; 4 — диафрагма; 5 — полупрозрачное зеркало; 6 — фотоприемник, контролирующий интенсивность падающего излучения; 7 — образец; 8 — фотоприемник, регистрирующий отраженное излучение; 9 — фокусирующая линза; 10 — фотоприемная матрица.

го частично отражается и детектируется фотоприемником (6) и частично проходит, и падает на образец (7), отражается и детектируется фотоприемником (8). Для передачи сигналов с фотоприемников на компьютер использовался 14-битный АЦП. Исследуемый образец закреплялся в держателе гониометра, вращение которого обеспечивало изменение угла падения излучения. Для отсчета падения с гониометра через каждые 0.5° на канал АЦП подавался синхроимпульс, после чего программными средствами зависимость коэффициента отражения от времени пересчитывалась в зависимость коэффициента отражения от угла падения $R(\theta)$. Полученная угловая зависимость программно очищалась от высокочастотных помех и сглаживалась методом бегущих медиан, что понижало уровень шума вдвое. Перед измерениями определялось значение темнового тока фотодиода, которое учитывалось при построении угловой зависимости коэффициента отражения.

На рис. 1, *b* изображена схема установки для проведения угловых измерений интенсивности отражения,

в которых положение образца остается неизменным. Расходящееся излучение от полупроводникового лазера (1) фокусируется линзой (9) и в виде светового конуса падает на образец (7). Распределение интенсивности отраженного излучения регистрируется приемной матрицей, после чего следует компьютерная обработка полученных результатов. Параллельные угловые измерения могут повысить точность измерений за счет многократного считывания данных с приемной матрицы и последующего усреднения по группе пикселей, отвечающих одному углу падения, а также за счет усреднения по времени сканирования и исключения погрешностей в установке угла падения. Использование полупроводникового лазера в параллельных угловых измерениях может упростить схему установки (см. рис. 1, *b*) за счет использования естественной расходимости лазерного излучения.

Наряду с предложенной схемой параллельных угловых измерений возможны и другие, например, с использованием матрицы фотоприемников и цилиндрической линзы, где падающее и отраженное от образца излучение имеет форму светового клина [6], а также схемы с использованием источника излучения с расходящимся пучком, наклонного образца, зеркала, отражающего пучок и матрицы фотоприемников [7].

Для определения параметров структур использовалась угловая зависимость $R_p(\theta)$, отличающаяся более высокой чувствительностью к определяемым параметрам по сравнению с $R_s(\theta)$. В диапазоне углов падения $40\text{--}85^\circ$ исследовались структуры различных типов — непоглощающий слой на поглощающей подложке ($\text{SiO}_2\text{--Si}$); поглощающий слой на поглощающей подложке (Au--Si), двуслойная структура ($\text{Ag--SiO}_2\text{--Si}$), состоящая из поглощающего и непоглощающего слоев на поглощающей подложке. Пленки серебра и золота получали методом вакуумного напыления. Угловая зависимость коэффициента отражения от данных структур измерялась по

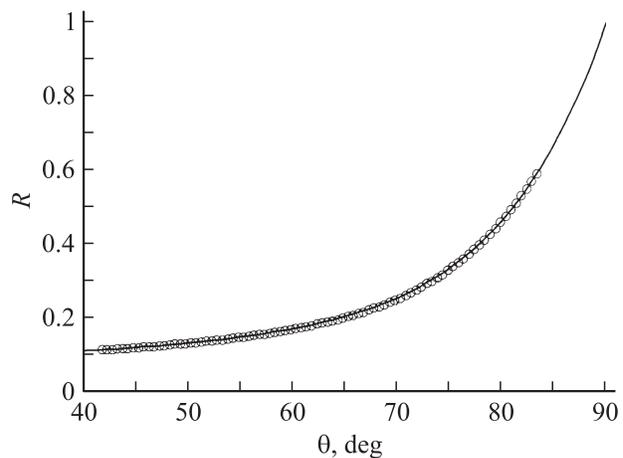


Рис. 2. Угловая зависимость коэффициента отражения структуры $\text{SiO}_2\text{--Si}$. Кружки — экспериментальные данные, кривая — расчет.

Таблица 3. Сопоставление значений параметров различных структур, определенных по угловой зависимости коэффициента отражения и по спектральным зависимостям эллипсометрических параметров

Структура	Параметры верхнего слоя	Значения параметров, найденные по угловой зависимости коэффициента отражения ($\lambda = 632.8 \text{ nm}$)	Значения параметров, найденные по спектральным зависимостям эллипсометрических параметров ($\lambda = 350\text{--}1000 \text{ nm}$)	Расхождение значений параметров
SiO ₂ –Si	n	1.44	1.445	0.005
	$d, \text{ nm}$	110.9	111.3	0.4
Au–Si	n	0.16	0.2	0.04
	k	3.37	3.39	0.02
Ag–SiO ₂ –Si	$d, \text{ nm}$	20.5	20.6	0.1
	n_2	2.39	2.32	0.07
	k_2	3.63	3.5	0.13
	$d_2, \text{ nm}$	8.4	8.9	0.5

Примечание. n, k, d — параметры слоя однослойной структуры, n_2, k_2, d_2 — параметры верхнего слоя двухслойной структуры.

схеме, приведенной на рис. 1, а. По полученным угловым зависимостям определялись параметры структур с использованием метода наименьших квадратов (4). Для независимой проверки результатов эксперимента параметры структур определялись с помощью спектрального эллипсометрического комплекса ЭЛЛИПС-1000 АСГ.

На рис. 2–4 приведены экспериментальные и расчетные угловые зависимости коэффициента отражения исследованных структур. В табл. 3 приведены параметры данных структур, определенные по угловой зависимости коэффициента отражения и по спектральным зависимостям эллипсометрических параметров.

При определении свойств структуры SiO₂–Si по угловой зависимости коэффициента отражения параметры кремниевой подложки имели значения $n_0 = 3.86, k_0 = 0.022$ при $\lambda = 632.8 \text{ nm}$ [8]. Перед напылением пленки Ag на SiO₂–Si методом спектральной эллипсометрии определялись параметры оксидного слоя

при $\lambda = 632.8 \text{ nm}$ $n_1 = 1.457, d_1 = 537.6 \text{ nm}$. Для структур Au–Si и Ag–SiO₂–Si значения параметров кремниевой подложки $n_0 = 3.87, k_0 = 0.027$.

На рис. 2–4 зависимости, рассчитанные на основе математической модели, демонстрируют хорошее соответствие экспериментальным кривым в широком диапазоне углов. Малые расхождения значений параметров (см. табл. 3), определенных двумя различными методами, свидетельствует об адекватности использования угловой зависимости коэффициента отражения для анализа слоистых структур различного состава.

Проведенные исследования различных возможностей многопараметрового определения свойств структур на основе анализа угловой зависимости коэффициента отражения показали преимущества использования функций R_p и $1/R_p \Delta R_p / \Delta \theta$ для определения комплекса связанных параметров. Данные натурных и вычислительных экспериментов продемонстрировали высокую чувстви-

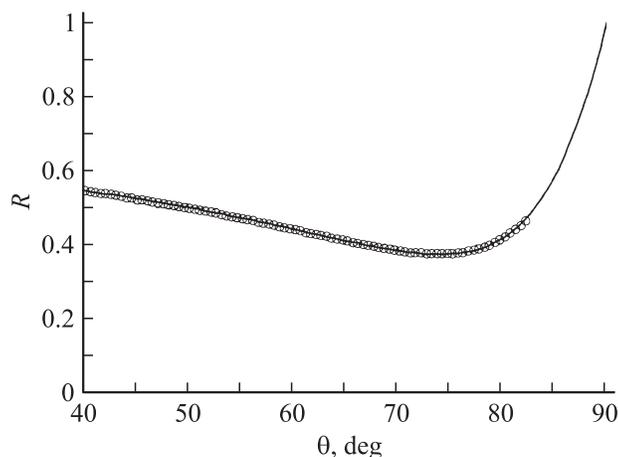


Рис. 3. Угловая зависимость коэффициента отражения структуры Au–Si. Кружки — экспериментальные данные, кривая — расчет.

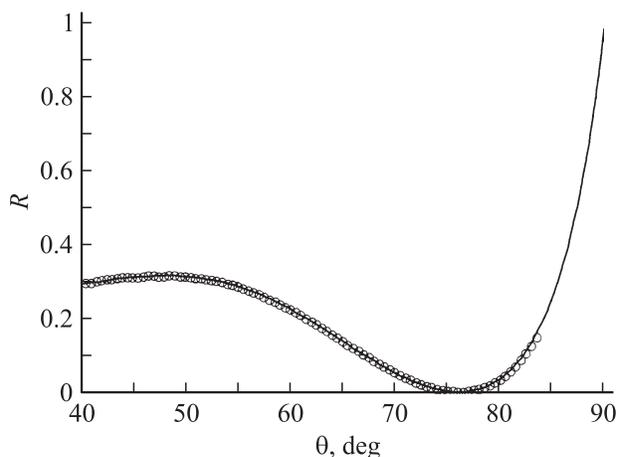


Рис. 4. Угловая зависимость коэффициента отражения структуры Ag–SiO₂–Si. Кружки — экспериментальные данные, кривая — расчет.

тельность угловой зависимости коэффициента отражения $R_p(\theta)$ к значениям оптических констант и толщины слоистых структур. Количественные результаты многопараметровых измерений проверены независимым методом спектральной эллипсометрии. Анализ погрешностей метода для диэлектрических, металлических и полупроводниковых слоев на различных подложках продемонстрировал его применимость для различного типа структур. Приведенные схемы параллельных измерений угловой зависимости с неподвижным образцом и усреднением данных по времени многократного сканирования могут повысить точность метода.

Заключение

На основе измерений зависимости коэффициента отражения от угла падения монохроматического излучения реализуются возможности многопараметрового, локального, экспрессного, неразрушающего определения толщины, показателей преломления и поглощения слоев толщиной от нескольких нанометров до десятых долей микрометра. Проведение таких измерений возможно для определения свойств нанометровых слоев и подложек в структурах с различными сочетаниями поглощающих и малопоглощающих материалов. При этом погрешности измерений по анализу угловых зависимостей отраженного излучения близки к погрешностям обычных эллипсометрических методов измерения в фиксированных условиях, но существенно более информативны и проще в аппаратном исполнении.

Список литературы

- [1] *Kovalenko S.A., Lisitsa M.P.* // *Semiconductors Physics, Quantum Electronics, and Optoelectronics*. 2001. Vol. 4. N 4. P. 352–357.
- [2] *Физика тонких пленок / Под ред. Г. Хасса и Р.Э. Туна*. Т. 4. М.: Мир, 1970. С. 7–122.
- [3] *Kovalenko S.A., Lisitsa M.P.* // *Semiconductor Physics, Quantum Electronics, and Optoelectronics*. 2002. Vol. 5. N 3. P. 294–299.
- [4] *Физика тонких пленок / Под ред. В.С. Хангулова*. Т. 1. М.: Мир, 1967. 344 с.
- [5] *Биленко Д.И., Дворкин Б.А., Дружинина Т.Ю.* и др. // *Опт. и спектр.* 1983. Т. 55. № 5. С. 885–890.
- [6] *Левченко А.С.* Разработка и совершенствование оптических методов измерения комплексной диэлектрической проницаемости и толщины наноразмерных пленок. Автореф. дис. канд. наук. Краснодар, 2006.
- [7] *Chinowsky T.M., Quinn J.G.* // *Sensors and Actuators*. 2003. Vol. 6954. P. 1–9.
- [8] *Золотарев В.М., Морозов В.Н., Смирнова Е.В.* Оптические постоянные природных и технических сред. Л.: Химия, 1984. 216 с.