

ДИФФЕРЕНЦИАЛЬНАЯ ОТРАЖАТЕЛЬНАЯ СПЕКТРОСКОПИЯ ПОГЛОЩАЮЩИХ СВЕРХТОНКИХ СЛОЕВ НА ПРОЗРАЧНЫХ ПОДЛОЖКАХ С ДВУМЯ ЗЕРКАЛЬНО ОТРАЖАЮЩИМИ ПОВЕРХНОСТЯМИ ПРИ НОРМАЛЬНОМ ПАДЕНИИ СВЕТА

П.В.Адамсон

В последние годы при разработке эффективных оптических методов для изучения приповерхностной области различных материалов наряду с эллипсометрией [1], методом поверхностных волн [2] и некоторыми другими [3] значительное внимание стали уделять также дифференциальной (модуляционной) отражательной спектроскопии в режиме внешнего отражения. Посредством этой методики успешно исследовались как свободная поверхность [4-7], так и *in situ* процесс роста [8-12] различных полупроводников (именно в последнем случае оптика обладает очень хорошей перспективой, поскольку традиционные (электронные) методы во многих ситуациях здесь вообще не работают). При этом интерпретация экспериментальных результатов, как правило, проводилась на основе феноменологической модели [13], которая позволяет исследовать в достаточно общем виде наиболее важные эффекты, обусловленные наличием переходного поверхностного слоя. Однако геометрия задачи [13] неприменима для прозрачных подложек тогда, когда необходимо учитывать влияние отражения света от тыльной стороны подложки.

Цель данного сообщения — выяснить роль второй зеркально отражающей поверхности в дифференциальной отражательной спектроскопии сверхтонких поглощающих переходных слоев на прозрачных подложках.

Рассмотрим нормальное (квазинормальное) отражение света с вакуумной длиной волны λ_0 от прозрачной пластинки с толщиной $d_m \gg \lambda_0$ и двумя зеркально отражающими границами раздела *A* и *B* (см. рис. 1, ϵ_m и $\epsilon_{a,b}$ — диэлектрические проницаемости пластинки и непоглощающих окружающих сред соответственно). Поскольку в практике почти всегда имеют место небольшие локальные вариации

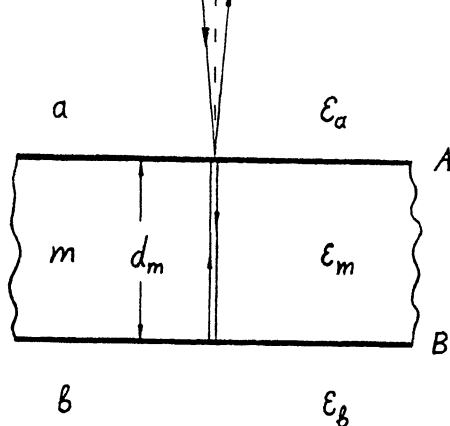


Рис. 1. Поперечное сечение прозрачной подложки.

толщины, а падающий свет не является идеально монохроматичным, то в результате фазового усреднения при расчете полного коэффициента отражения R от пластинки с учетом многократных отражений на тыльной поверхности следует суммировать интенсивности, а не амплитуды поля (в некогерентном случае вторая отражающая поверхность выступает независимым (адитивным) образом). Если свет падает со стороны границы раздела A (рис. 1), то для R получается следующее выражение (без учета затухания) [14]:

$$R = R_{am} + R_{mb}T_{am}T_{ma}(1 - R_{ma}R_{mb})^{-1}, \quad (1)$$

где R_{ij} и T_{ij} — энергетические коэффициенты отражения и пропускания при падении света из i -й среды на j -ю среду. В действительности, конечно, всегда существует определенное затухание в материале подложки, но с точки зрения анализа рассматриваемой проблемы это просто эквивалентно случаю с некоторым уменьшенным значением коэффициента отражения от второй поверхности ($R_{mb} \rightarrow R_{mb}e^{-2\alpha_m d_m}$, где α_m — коэффициент затухания в подложке). Из вышесказанного следует также, что в рассматриваемой ситуации определение изменения фазы при отражении невозможно или, другими словами, отражательная спектроскопия по существу имеет фотометрический характер. Поэтому недавно разработанный поляризационный метод с двойной модуляцией [6], где измеряется относительное изменение комплексных амплитудных коэффициентов отражения, здесь не применим.

Выделяя приповерхностную область от остального объема мысленной геометрической поверхностью, величины R_{ij} и T_{ij} можно представить в виде $R_{ij} = R_{ij}^{(0)}(1 + \alpha_{ij})$, $T_{ij} = T_{ij}^{(0)}(1 + \beta_{ij})$, где $R_{ij}^{(0)}$ и $T_{ij}^{(0)}$ являются чисто френелевскими коэффициентами отражения и пропускания, описывающих объемный вклад материала подложки, α_{ij} и β_{ij} — поправки, связанные с реальными физическими поверхностями. В случае сверхтонких поверхностных слоев и нормального падения света $|\alpha_{ij}| \ll 1$ и $|\beta_{ij}| \ll 1$. Тогда, учитывая только члены, содержащие малые параметры α_{ij} и β_{ij} до первой степени, получим

$$R \simeq R^{(0)} + R_A \alpha_{am} + \frac{T_A^2 R_B}{1 - R_A R_B} \times \left[\beta_{am} + \beta_{ma} + \frac{\alpha_{mb} + R_A R_B \alpha_{ma}}{1 - R_A R_B} \right], \quad (2)$$

где $R^{(0)}$ выражается через (1), если там $R_{ij} \rightarrow R_{ij}^{(0)}$ и $T_{ij} \rightarrow T_{ij}^{(0)}$; $R_A = R_{am}^{(0)} = R_{ma}^{(0)}$, $T_A = T_{am}^{(0)} = T_{ma}^{(0)}$, $R_A + T_A = 1$, $R_B = R_{mb}^{(0)} = R_{bm}^{(0)}$. Как известно, в дифференциальной отражательной спектроскопии регистрируемой величиной является относительное изменение коэффициента отражения в результате изменения химического состава границ раздела или характера взаимодействия света с поверхностными структурами при модуляции поляризации (поляризационная анизотропия отражения). При этом предполагается, что оптические свойства объема — коэффициенты $R_{ij}^{(0)}$ и $T_{ij}^{(0)}$ не изменяются (именно поэтому, например, поляризационный метод применен лишь для изотропных подложек). В нашем случае для относительного изменения коэффициента отражения $\Delta R/R$ с точностью до первого порядка по параметрам α_{ij} и β_{ij} на основе (2) получим

$$\frac{\Delta R}{R} \simeq \frac{(1-r)R_A(\alpha_{am}^{(1)} - \alpha_{am}^{(2)}) + t(\beta_{am}^{(1)} - \beta_{am}^{(2)} + \beta_{ma}^{(1)} - \beta_{ma}^{(2)}) + (1-r)^{-1}(\alpha_{mb}^{(1)} - \alpha_{mb}^{(2)} + r(\alpha_{ma}^{(1)} - \alpha_{ma}^{(2)}))}{(1-r)R_A + t} \quad (3)$$

где $\alpha_{ij}^{(1)}$, $\beta_{ij}^{(1)}$ — параметры приповерхностной области во время первого и $\alpha_{ij}^{(2)}$, $\beta_{ij}^{(2)}$ — второго актов измерения отраженного сигнала, $r = R_A R_B$, $t = T_A^2 R_B$.

Изучаем более подробно такую ситуацию, где $\alpha_{mb}^{(1)} = \alpha_{mb}^{(2)}$, а приповерхностная область на первой границе раздела оказывается поглощающей. Если поверхностный слой с толщиной $d_e \ll \lambda_0$ можно считать еще макроскопическим, т.е. d_e все-таки значительно больше, чем характерный микроскопический размер молекулярно-дискретной структуры среды, то его целесообразно характеризовать эффективной (усредненной) комплексной диэлектрической проницаемостью $\varepsilon_e = \varepsilon'_e - i\varepsilon''_e$ и α_{ij}, β_{ij} можно найти в рамках макроскопической электродинамики. Следуя [13],

$$\alpha_{am} \simeq 8\pi\sqrt{\varepsilon_a}(\varepsilon_m - \varepsilon_a)^{-1}\varepsilon''_e d_e / \lambda_0, \quad (4)$$

$$\alpha_{ma} \simeq 8\pi\sqrt{\varepsilon_m}(\varepsilon_m - \varepsilon_a)^{-1}\varepsilon''_e d_e / \lambda_0, \quad (5)$$

и таким же методом, как выведены эти формулы, получим

$$\beta_{am} \simeq \beta_{ma} \simeq -4\pi(\sqrt{\varepsilon_a} + \sqrt{\varepsilon_m})^{-1}\varepsilon''_e d_e / \lambda_0, \quad (6)$$

если ограничиться лишь первым порядком по малому параметру d_e/λ_0 (такое приближение, конечно, оправдано только для достаточно сильно поглощающего поверхностного слоя ($\varepsilon''_e \gtrsim 1$), в случае слабопоглощающего слоя необходимо учитывать в разложении и члены $\sim (d - e/\lambda_0)^2$). Далее, на основе (3)–(6) получим

$$\begin{aligned} \Delta_A \equiv [\varepsilon''_e d_e]^{(1)} - [\varepsilon''_e d_e]^{(2)} &= (\varepsilon_m - \varepsilon_a) \times \\ &\times (c8\pi\sqrt{\varepsilon_a}F(x, y))^{-1} \lambda_0 (\Delta R/R)_A, \end{aligned} \quad (7)$$

где $(\Delta R/R)_A$ — относительное изменение коэффициента отражения на границе раздела A ,

$$F(x, y) = \frac{(x-1)^2}{V(x-1)^2 + 4x} \left[V - x \left(\frac{4}{x-1} + \frac{1}{V} \right) \right], \quad (8)$$

$$V = (1+y)(x^2+y)(x-y)^{-2}, \quad (9)$$

$x^2 \equiv \varepsilon_m/\varepsilon_a$ и $y^2 \equiv \varepsilon_b/\varepsilon_a$. Формула (7) применима и для микроскопических (мономолекулярных) слоев, поскольку выражения (4)–(6) совпадают с результатами микротeorии, только величина $\varepsilon''_e d_e$ получает другой физический смысл [15, 16]. Например, в случае поляризационной (модуляционной) отражательной спектроскопии свободной поверхности

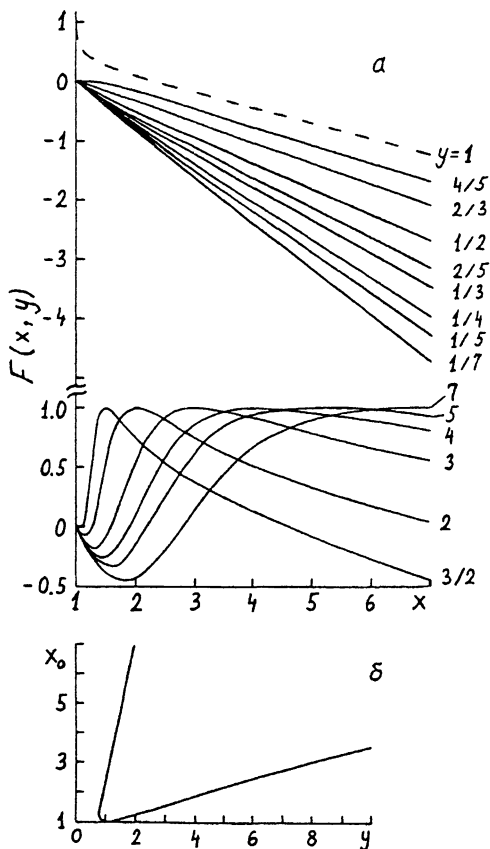


Рис. 2. Зависимость функции $F(x, y)$ от $x \equiv \sqrt{\epsilon_m/\epsilon_a}$ при разных значениях параметра $y \equiv \sqrt{\epsilon_b\epsilon_a}$ (а) и зависимость нулевых точек x_0 этой функции ($F(x_0, y) = 0$) от y (б). Номера y кривых указывают значения y .

вместо Δ_A выступает параметр $\text{Im}[\Delta\epsilon_m d_s]_A$, где $\Delta\epsilon_m$ — анизотропия диэлектрического отклика “эффективной” приповерхностной области с толщиной d_s [17]. Ясно, что рассматриваемый метод, в котором ограничивается лишь членами первого порядка по d_e/λ_0 , в принципе не позволяет измерить изменение величины $\epsilon'_e d_e$. Зато он дает возможность прямым образом экспериментально определить изменение мнимой части диэлектрического отклика приповерхностной области (при изменении ее химического состава) или анизотропию этой величины для определенной фиксированной поверхности.

Зависимость функции F от x при разных значениях y представлена на рис. 2, а. Нулевые точки x_0 этой функции ($F(x_0 y) = 0$) можно получить из уравнения

$$x_0^4 - y(y+2)(x_0^3 - x_0^2) - y^2(2y+3)x_0 + y^2(1+y)^2 = 0. \quad (10)$$

Если $y < 0.7914$, то оно вещественными решениями не обладает, а при $y \gtrsim 0.7914$ у этого уравнения существуют два физических смысла имеющегося решения (рис. 2, б). В симметричном случае ($y = 1$) одним решением, разумеется, является $x_0 = 1$, а другое получается из уравнения $x_0^3 - 2x_0^2 + x_0 - 4 = 0$. Из последнего следует, что для $\sqrt{\varepsilon_m} = 2.3146\sqrt{\varepsilon_a}$ $(\Delta R)_A = 0$ (коэффициент отражения не изменяется, хотя $\Delta_A \neq 0$). Таким образом, изменение коэффициента отражения может быть как положительным, так и отрицательным. Обратим внимание на то, что при $y > 1$ ($\varepsilon_b > \varepsilon_a$) существование зеркального отражения от второй поверхности подложки приводит к уменьшению абсолютного значения измеряемой величины $(\delta R/R)_A$ по сравнению со случаем, где такое отражение отсутствует и поэтому может оказаться с точки зрения эксперимента нежелательным (при актуальных значениях $\varepsilon_m/\varepsilon_a$ это справедливо и для симметричной структуры). Для получения более сильного изменения коэффициента отражения в случае подложек с двумя зеркально отражающими поверхностями в качестве исследуемой целесообразно использовать тыльную границу раздела. Действительно, если $\Delta_A = 0$, а $\Delta_B = [\varepsilon_e'' d_e]^1 - [\varepsilon_e'' d_e]^{(2)} \neq 0$, $\varepsilon_d = \varepsilon_b$, то

$$(\Delta R/R)_B = 2\pi\sqrt{\varepsilon_m} \left(\sqrt{\varepsilon_m + \varepsilon_a} \right)^2 (\varepsilon_m^2 - \varepsilon_a^2)^{-1} \Delta_B/\lambda_0, \quad (11)$$

и нетрудно показать, что отношение $(\Delta R/R)_B/(\Delta R/R)_A > 1$. Отметим также, что при такой схеме измерения изменение коэффициента отражения всегда отрицательное, т.е. $(\Delta R)_B < 0$.

Список литературы

- [1] *Эллипсометрия — метод исследования поверхности* / Под ред. А.В.Ржанова. Новосибирск: Наука, 1983. 180 с.
- [2] *Дмитрук Н.Л., Литовченко В.Г., Стрижжевский В.Л. Поверхностные поляритоны в полупроводниках и диэлектриках*. Киев: Наукова Думка, 1989. 376 с.
- [3] *Aspnes D.E.* // SPIE Proc. 1990. V. 1285. P. 2-13.
- [4] *Cricenti A., Selci S., Ciccacci F. et al.* // Physica Scripta. 1988. V. 38. P. 199-203.
- [5] *Berkovits V.L., Kiselev V.A., Safarov V.I.* // Surf. Sci. 1989. V. 211/212. P. 489-502.

- [6] *Aspnes D.E., Chang Y.C., Studna A.A. et al.* // Phys. Rev. Lett. 1990. V. 64. N 2. P. 192-195.
- [7] *Kamiya I., Aspnes D.E., Florez L.T., Harboson J.P.* // Phys. Rev. B. 1992. V. 46. N 24. P. 15894-15904.
- [8] *Aspnes D.E., Harbison J.P., Studna A.A., Florez L.T.* // Phys. Rev. Lett. 1987. V. 59. N 15. P. 1687-1690.
- [9] *Acher O., Koch S.M., Omnes F. et al.* // J. Appl. Phys. 1990. V. 68. N 7. P. 3564-3577.
- [10] *Deppert K., Jönsson J., Samuelson L.* // Appl. Phys. Lett. 1992. V. 61. N 13. P. 1558-1560.
- [11] *Armstrong S.R., Hoare R.D., Pemble M.E. et al.* // J. Crystal Growth. 1992. V. 124. P. 37-43.
- [12] *Kobayashi N., Kovayashi Y.* // Thin Solid Films. 1993. V. 225. P. 32-39.
- [13] *McIntyre J.D.E., Aspnes D.E.* // Surf. Sci. 1971. V. 24. P. 417-434.
- [14] *Physics of Thin Films.* N.Y.: Academic Press, 1963.
- [15] *Schaich W.L., Chen W.* // Phys. Rev. B. 1989. V. 39. N 15. P. 10714-10724.
- [16] *Schaich W.L., Chen W.* // Phys. Rev. B. 1989. V. 40. N 8. P. 5350-5358.
- [17] *Chang Y.-C., Aspnes D.E.* // Phys. Rev. B. 1990. V. 41. N 17. P. 12002-12012.

Институт физики
Тарту, Эстония

Поступило в Редакцию
11 января 1994 г.