

ДИФФЕРЕНЦИАЛЬНЫЙ ФОТОМЕТРИЧЕСКИЙ МЕТОД ОПРЕДЕЛЕНИЯ ПОКАЗАТЕЛЯ ПРЕЛОМЛЕНИЯ И ТОЛЩИНЫ СВЕРХТОНКИХ ДИЭЛЕКТРИЧЕСКИХ ПЛЕНОК НА ПРОЗРАЧНЫХ ПОДЛОЖКАХ

П.В.Адамсон

В настоящее время для одновременного определения толщины и оптических постоянных тонких пленок наряду с эллипсометрическими методами широко применяются также фотометрические методы, поскольку экспериментальное осуществление последних элементарно. Однако сравнительно простые и надежные из них, использующие интерференционные экстремумы спектра пропускания (отражения) [1-7], не работают в случае сверхтонких пленок. Остальные методы характеризуются весьма сложной математической обработкой результатов измерений: причина заключается в том, что искомые величины получаются путем решения системы высоколинейных трансцендентных уравнений для каждой фиксированной частоты отдельно [8-14] или методом аппроксимирующей кривой (пригонкой экспериментального и теоретического спектров пропускания [15,16]), обладающих, как правило, многими решениями, имеющими физический смысл. Кроме того, часто ошибки измерения — как систематические, так и случайные — могут приводить к тому, что обратная задача вообще не имеет решения или получить его с желаемой точностью в принципе невозможно, так как задача, по существу, является некорректно поставленной [17]. С другой стороны, если толщина определяется независимым образом, например интерферометрическим [18] или рентгенодифракционным [19,20], то погрешности для оптических постоянных оказываются малыми лишь в том случае, если толщина пленки измерена с очень высокой точностью [21,22]. В то же время хорошо известно, что для пленок, толщина которых значительно меньше, чем длина волны света, существуют несложные приближенные выражения для коэффициентов отражения и пропускания [23,24]. В данном сообщении и показывается, как с помощью таких упрощенных формул можно достаточно просто и надежно одновременно определить толщину и показатель преломления диэлектрических сверхтонких пленок на толстых прозрачных подложках в случае однородных и изотропных материалов.

Новый метод основывается на том, что вместо обычного коэффициента отражения измеряется разность энергетических коэффициентов отражения от подложки с исследуемой пленкой и без нее в двух различных случаях: во-первых, при нормальном падении и, во-вторых, для p -поляризованного света под углом Брюстера относительно подложки. Если толщина однородной пленки мала по сравнению с длиной волны, то из электромагнитной теории посредством стандартной техники [23] в случае p -поляризованного излучения и полубесконечной подложки получим

$$\Delta R \simeq 16\pi^2 n_a n_s \cos \varphi_a \cos \varphi_S \times \\ \times \frac{(\varepsilon_f \cos^2 \varphi_S - \varepsilon_S \cos^2 \varphi_f)(\varepsilon_f \cos^2 \varphi_a - \varepsilon_a \cos^2 \varphi_f)}{(n_a \cos \varphi_S + n_S \cos \varphi_a)^4} \left(\frac{d_f}{\lambda} \right)^2, \quad (1)$$

где $\Delta R = R_d - R_0$, R_d и R_0 — энергетические коэффициенты отражения от непоглощающей пленки и от чистой прозрачной подложки (т. е. от подложки без пленки), d_f — толщина пленки, λ — длина волны в вакууме, $\varepsilon_S = n_{S,f,a}^2$ — вещественные диэлектрические постоянные подложки S , пленки f и окружающей среды a , φ_a — угол падения, $\varphi_{f,S}$ — углы преломления в пленке и подложке. Таким образом, для угла Брюстера ($\tan \varphi_a = n_S/n_a$)

$$\Delta R_B \simeq (\varepsilon_S - \varepsilon_f)^2 (\varepsilon_f - \varepsilon_a)^2 \varepsilon_f^{-2} (\varepsilon_a + \varepsilon_S)^{-1} (d_f/\lambda)^2, \quad (2)$$

а для нормального падения $\Delta R_N = \Delta R_N^{(0)} \cdot F$, где

$$\Delta R_N^{(0)} \simeq 16\pi^2 n_a n_S (\varepsilon_f - \varepsilon_S) (\varepsilon_f - \varepsilon_a) (n_a + n_S)^{-4} (d_f/\lambda)^2, \quad (3)$$

$$F = 1 - R_B \cdot \frac{(1 - R_{aS})(1 + R_{aS}(1 - 2R_B))}{(1 - R_{aS}R_B)(R_{aS} + R_B - 2R_{aS}R_B)}. \quad (4)$$

Величина F характеризует влияние многократного отражения света в подложке. В формуле (4) $R_{aS} = (n_a - n_S)^2 (n_a + n_S)^{-2}$ — обычный френелевский (теоретический) коэффициент отражения от резкой границы чистой подложки, R_B — энергетический коэффициент отражения перпендикулярно падающего луча от тыльной стороны подложки в направлении нормали. Если многократное отражение подавлено ($R_B \rightarrow 0$), то $F = 1$ (заметим, что выражение (4) получено при условии, что $|\Delta R_N^0| \ll R_{aS}$). Поведение ΔR в зависимости от угла падения показано на рис. 1, а, б. Зависимость ΔR_B и $\Delta R_N^{(0)}$ от отношения d_f/λ представлена на рис. 1, в, г, а зависимость этих величин и их отношения $\Delta R_B/\Delta R_N^{(0)}$ от n_f на рис. 2.

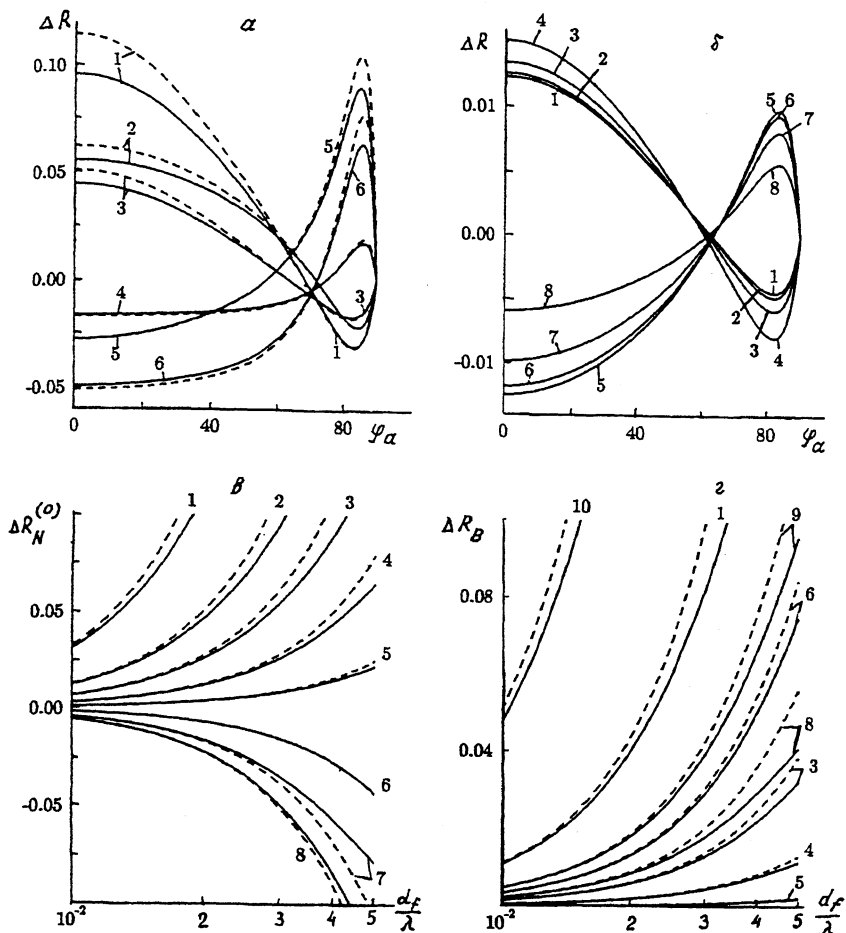


Рис. 1. Зависимость ΔR от угла падения φ_α (a — $d_f/\lambda = 2 \cdot 10^{-2}$ (2 и 4), $3 \cdot 10^{-2}$ (1 и 6), $4 \cdot 10^{-2}$ (3 и 5); $n_s = 1.5$ (1 и 3), 2.0 (2), 4.0 (4-6); $n_f = 1.5$ (5), 2.0 (3), 2.5 (1), 3.0 (2 и 6)) и от потерь в пленке (b — $d_f/\lambda = 2 \cdot 10^{-2}$ (1-4), $4 \cdot 10^{-2}$ (5-8); $n_s = 1.5$ (1-4), 2.2 (5-8); $n_f = 2.0$ (1-8); $n_f^\parallel = 0$ (1 и 5), $5 \cdot 10^{-3}$ (2 и 6), $2 \cdot 10^{-2}$ (3 и 7), $5 \cdot 10^{-2}$ (4 и 8)) и зависимость $\Delta R_N^{(0)}$ и ΔR_B от d_f/λ (e, z : $n_s = 1.5$ (1-5 и 10), 4.0 (6-9); $n_f = 1.5$ (6), 1.75 (5), 2.0 (4 и 9), 2.25 (3), 2.5 (2), 3.0 (1 и 8), 3.5 (7), 4.0 (10)). $n_a = 1.0$ ($a-z$). Пунктирные кривые — расчет по приближенным формулам (a — (1), e — (3) и z — (2)), сплошные кривые — по точным формулам Френеля.

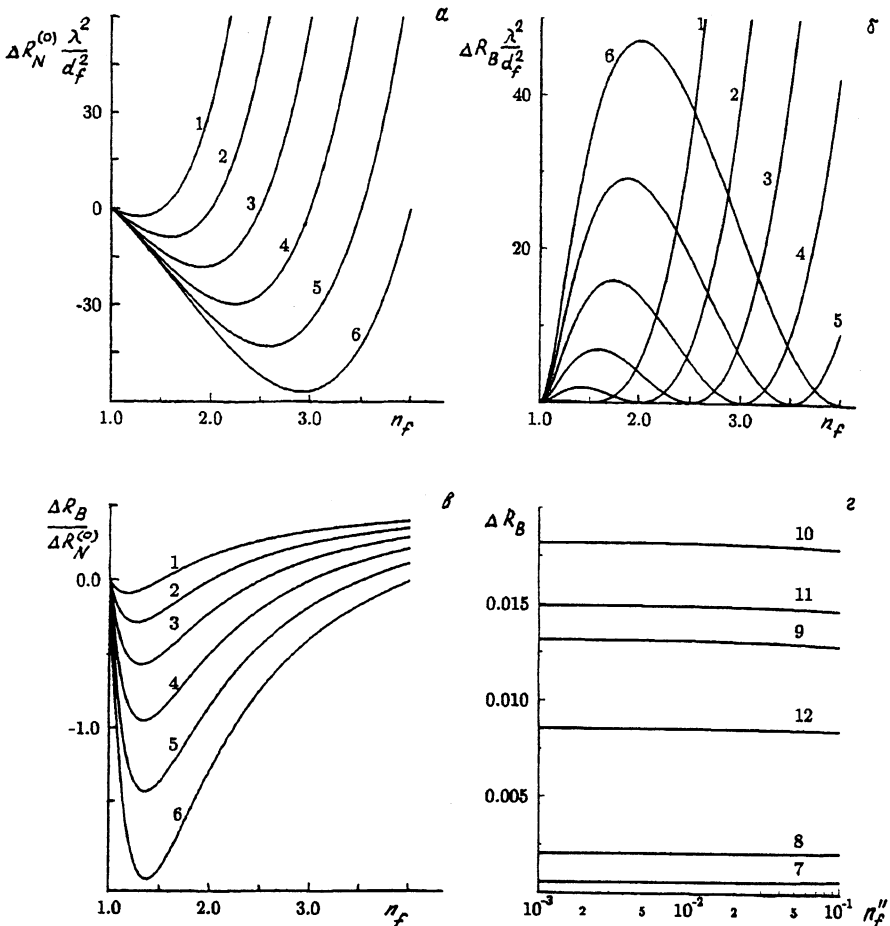


Рис. 2. Зависимость $\Delta R_N^{(0)}$, ΔR_B , отношения $\Delta R_B/\Delta R_N^{(0)}$ от показателя преломления прозрачной пленки ($n_f^{\parallel} = 0$) для $n_s = 1.5$ (1); 2.0 (2); 2.5 (3); 3.0 (4); 3.5 (5); 4.0 (6) и ΔR_B от n_f^{\parallel} при $d_f/\lambda = 10^{-2}$ для $n_f = 1.8$ (7); 2.0 (8); 2.5 (9), если $n_s = 1.5$ и для $n_f = 2.0$ (10); 2.5 (11); 3.0 (12), если $n_s = 4.0$. $n_a = 1.0$ (а-г).

С точки зрения практики более актуальным является случай, когда $\varepsilon_f > \varepsilon_a$, и поэтому в дальнейшем ограничимся анализом только такой ситуации. ΔR_B является всегда положительным, обладая при $\varepsilon_f > \varepsilon_a$ одинаковыми значениями при трех различных значениях ε_f , два из которых ε_f и ε_f' меньше, чем ε_s , и связаны простым соотношением

$\varepsilon_f' = \varepsilon_a \varepsilon_S / \varepsilon_f$. В промежутке $\varepsilon_a < \varepsilon_f < \varepsilon_S$ ΔR_B достигает своего максимального значения, если ε_f равно геометрическому среднему диэлектрических проницаемостей подложки и окружающей среды ($\varepsilon_f = \sqrt{\varepsilon_a \varepsilon_S}$). Величина $\Delta R_N^{(0)}$ и, следовательно, $\Delta R_B / \Delta R_N^{(0)}$ (или $\Delta R_N^{(0)} / \Delta R_B$) оказываются отрицательными, если $\varepsilon_a < \varepsilon_f < \varepsilon_S$, обладая при этом также двумя одинаковыми значениями при разных значениях ε_f . Именно для $\Delta R_N^{(0)}$ при ε_f и $\varepsilon_f' = \varepsilon_S + \varepsilon_a - \varepsilon_f$, а для $\Delta R_B / \Delta R_N$ эти точки связаны соотношением

$$\varepsilon_f' = \varepsilon_f \left(2 - \varepsilon_f^{-1} \varepsilon_f^{(\min)} \right)^{-1} \times \\ \times \left(1 \pm \left(1 - \varepsilon_f^{-1} \varepsilon_f^{(\min)} \left(2 - \varepsilon_f^{-1} \varepsilon_f^{(\min)} \right) \right)^{1/2} \right),$$

где знак плюс перед квадратным корнем следует взять, если $\varepsilon_f < \varepsilon_f^{(\min)}$, и знак минус, если $\varepsilon_f > \varepsilon_f^{(\min)}$. Величина $(\varepsilon_f^{(\min)})^{-1} = (\varepsilon_a^{-1} + \varepsilon_S^{-1})/2$ — значение ε_f , при котором $\Delta R_B / \Delta R_N^{(0)}$ достигает своего максимального отрицательного значения (для $\Delta R_N^{(0)}$ $\varepsilon_f^{(\min)} = (\varepsilon_a + \varepsilon_S)/2$). Таким образом, очевидно, что решение обратной задачи, т. е. определение ε_f из $\Delta R_B / \Delta R_N$ (или из ΔR_N , если толщина пленки известна), не является однозначным (обладает двумя имеющими физический смысл решениями) в случае, если $\varepsilon_f < \varepsilon_S$. Из (2) и (3) получим

$$\varepsilon_f = \left(\varepsilon_S + \varepsilon_a \pm ((\varepsilon_S - \varepsilon_a)^2 + 4\varepsilon_S \varepsilon_a P)^{1/2} \right) (2(1 - P))^{-1}, \quad (5)$$

$$P = 16n_a n_S (\varepsilon_a + \varepsilon_S) (n_a + n_S)^{-4} F \cdot (\Delta R_B / \Delta R_N). \quad (6)$$

Если измеряется $\Delta R_N / \Delta R_B$, то необходимо $P \rightarrow P^{-1}$. В эксперименте следует учитывать также следующее обстоятельство: отношение $\Delta R_B / \Delta R_N (\Delta R_N / \Delta R_B)$ можно получить прямым делением разностей соответствующих отраженных сигналов, но при этом интенсивность падающего луча должна быть одной и той же как для нормального падения, так и для угла Брюстера.

Выяснение истинного значения ε_f , если (5) дает два физически возможных решения для исследуемой пленки, не сложно проводить на основе следующих фактов. Из формулы (3) видно (см. также рис. 1), что для $\varepsilon_f > \varepsilon_a$ $\Delta R_N^{(0)} > 0$ при $\varepsilon_f > \varepsilon_S$ и $\Delta R_N^{(0)} < 0$ в обратной ситуации. Если оба

решения (5) больше (меньше) ε_S , то для селекции правильного значения ε_f можно использовать то свойство угловой зависимости ΔR p -поляризованного излучения, что она изменяет свой знак около угла $\varphi_1 = \text{arctg}(n_f/n_a)$. Анализ формулы (1) показывает, что при выполнении условия $(\varepsilon_S - \varepsilon_a)\varepsilon_f < \varepsilon_S\varepsilon_a$ существует и вторая нулевая точка $\varphi_2 = \text{arcsin}(\varepsilon_S\varepsilon_f\varepsilon_a^{-1}(\varepsilon_S + \varepsilon_f)^{-1})^{1/2}$, но для $\varepsilon_a = 1$ это возможно лишь при малых значениях ε_S и ε_f . Заметим, что на практике измерение угла φ_1 , где отражение от пленки такое же, как от поверхности подложки, уже давно применяется для определения показателя преломления прозрачных пленок [25,26].

При практическом использовании рассматриваемого метода необходимо учитывать следующие факторы, определяющие, по сути, пределы его применимости. Во-первых, точность приближенных формул зависит не только от значения d_f/λ , но и от значений $\varepsilon_{S,f}$, так как величины $\Delta R_N^{(0)}$ и ΔR_B при заданном d_f/λ существенно изменяются при вариации показателей преломления сред (рис. 1 и 2). Сравнение с расчетами по точным формулам Френеля показывает следующее (см. также рис. 1): если $\varepsilon_f > \varepsilon_S$ ($\Delta R_N^{(0)} > 0$), то выражения (2) и (3) оказываются более точными при малых разностях $\varepsilon_f - \varepsilon_S$. Ошибка быстро увеличивается с возрастанием этой величины, как и сами значения $\Delta R_N^{(0)}$ и ΔR_B . Если $\varepsilon_f < \varepsilon_S$ ($\Delta R_N^{(0)} < 0$), то, наоборот, точность приближенных формул относительно лучше при больших скачках показателей преломления между пленкой и подложкой. Таким образом, с точки зрения определения оптических постоянных метод является более подходящим для таких пленок, показатель преломления которых больше показателя преломления подложки, но незначительно отличается от него, когда приближенные формулы с точностью до нескольких процентов работают до значений d_f/λ на несколько сотых. Однако если интерес представляет лишь толщина пленки, то метод оказывается в значительной степени перспективным, так как точность приближенных формул и диапазон измеряемых толщин можно запросто увеличить применением более длинноволнового (инфракрасного) излучения. Точный расчет показывает также, что прозрачными в рамках данного способа можно считать пленки с мнимой частью показателя преломления $\lesssim 10^{-3}$, когда ошибка из-за неучета потерь не превышает $\sim 1\%$ (см. также рис. 1, б и рис. 2, г). Следовательно, рассматриваемый метод применим не только для высокопрозрачных оптических материалов, но и для полупроводников в спектральной области их прозрачности.

Второе немаловажное обстоятельство, которое ограничивает область применимости метода снизу, т. е. не дает возможности определить параметры уже практически поверхностных слоев, заключается в том, что первоначальная поверхность подложки (до нанесения исследуемой пленки), как правило, не является совершенно чистой и гладкой. К тому же в результате технической обработки, например механической шлифовки, на поверхности подложки может образоваться определенный переходный слой с показателем преломления, отличным от его объемного значения. В результате этого коэффициент отражения R_0 не описывается точно формулой Френеля (как предполагается при выводе выражения (1)) и он не обращается в ноль при угле Брюстера. Величина такой ошибки будет незначительной лишь в том случае, если толщина нанесенной пленки существенно превосходит толщину разрушенного или адсорбированного слоя и амплитуду шероховатости поверхности подложки. В силу этого более широкие возможности данный метод имеет в случае подложки с почти идеальной границей раздела, например, отполированные специальным образом стекла или полупроводниковые структуры, выращенные современными методами эпитаксии, когда нижняя граница определяемых толщин устанавливается уже чисто физическим аспектом — возможностью применения макроскопического усреднения и введения показателя преломления — параметра сплошной среды.

Список литературы

- [1] *Валеев А.С.* // Опт. и спектр. 1963. Т. 15. В. 4. С. 500–511.
- [2] *Ляшенко С.П., Милославский В.К.* // Опт. и спектр. 1964. Т. 16. В. 1. С. 151–153.
- [3] *Черемухин Г.С., Кириенко Б.В., Гурдин Е.К.* // ОМП. 1976. В. 6. С. 13–15.
- [4] *Manifacier J.C., Gasiot J., Fillard J.P.* // J. Phys. E: Sci. Instrum. 1976. V. 9. P. 1002–1004.
- [5] *Swanepoel R.* // J. Opt. Soc. Am. A. 1985. V. 2. N 8. P. 1339–1343.
- [6] *Виленский Б.Ф., Волощук Р.Я., Данилюк Ю.В.* // Опт. и спектр. 1989. Т. 67. В. 5. С. 1150–1153.
- [7] *Minkov D.* // J. Opt. Soc. Am. A. 1991. V. 8. N 2. P. 306–310.
- [8] *Nilsson P.-O.* // Appl. Opt. 1968. V. 7. N 3. P. 435–442.
- [9] *Nestell J.E., Christy R.W.* // Appl. Opt. 1972. V. 11. N 3. P. 643–651.
- [10] *Denton R.E., Campbell R.D., Tomlin S.G.* // J. Phys. D.: Appl. Phys. 1972. V. 5. P. 852–863.
- [11] *Hansen N.W.* // J. Opt. Soc. Am. 1973. V. 63. N 7. P. 793–802.
- [12] *Liddell H.M.* Computer-aided Techniques for the Design of Multilayer Filters. Bristol: Adam Hilger Ltd., 1981. 194 p.
- [13] *Hjortberg A.* // Appl. Opt. 1981. V. 20. N 7. P. 1254–1263.
- [14] *Panayotov V., Konstantinov I.* // Appl. Opt. 1991. V. 30. N 19. P. 2795–2800.
- [15] *Siqueiros J.M., Machorro R., Regalado L.E.* // Appl. Opt. 1988. V. 27. N 12. P. 2549–2553.

- [16] Klein J.D., Yen A., Cogan S.F. // J. Appl. Phys. 1990. V. 68. N 4. P. 1825-1830.
- [17] Воеводина С.Н., Тихонравов А.В. // Опт. и спектр. 1990. Т. 68. В. 4. С. 927-931.
- [18] Беннет Х.Е., Беннет Дж. М. // Физика тонких пленок. Т. 4. М.: Мир, 1970. С. 7-122.
- [19] Umrath W. // Z. Angew. Phys. 1967. Bd. 22. H. 5. P. 406-410.
- [20] Hüppauff M., Bange K., Lengeler B. // Thin Solid Films. 1993. V. 230. P. 191-198.
- [21] Aspnes D.E., Craighead H.G. // Appl. Opt. 1968. V. 25. N. 8. P. 1299-1310.
- [22] Elizalde E., Frigerio J.M., Rivory J. // Appl. Opt. 1986. V. 25. N 24. P. 4557-4561.
- [23] Шкляревский И.Н., Шкляревский О.И. // Опт. и спектр. 1969. Т. 27. В. 4. С. 654-660.
- [24] Кизель В.А. Отражение света. М.: Наука, 1973. 352 с.
- [25] Abeles F. Progress in Optics. V. 2. Amsterdam: North Holland Publ., 1963. P. 249.
- [26] Wu H.Q., Hodgkinson I. // J. Opt. Soc. Am. A. 1993. V. 10. N 9. P. 2072-2075.

Институт физики
АН Эстонии
Тарту

Поступило в Редакцию
23 февраля 1995 г.
