

07;11;12

## НОВЫЙ ФОТОМЕТРИЧЕСКИЙ МЕТОД ДЛЯ ОПТИЧЕСКОЙ ДИАГНОСТИКИ ПОВЕРХНОСТНЫХ СЛОЕВ ПРОЗРАЧНЫХ МАТЕРИАЛОВ

© П.В.Адамсон

Рассматривается способ определения параметров сверхтонкого поверхностного слоя посредством нанесения на него второго прозрачного сверхтонкого слоя с произвольными параметрами и измерения углового спектра, вызванного этим слоем дифференциального отражения  $p$ -поляризованного света около угла Брюстера.

Показано, что в первом приближении полуширина такого спектра зависит линейно от толщины первоначального поверхностного слоя и вообще не зависит от параметров второго слоя. Это дает возможность легко определить толщину исследуемого поверхностного слоя, если показатели преломления известны. Для одновременного определения двух неизвестных — показателя преломления и толщины поверхностного слоя используется в качестве второй независимой величины дифференциальное отражение  $s$ -поляризованного света.

В настоящее время оптическая диагностика сверхтонких слоев вызывает повышенный интерес не только в физике приповерхностной области твердых тел [1-5] и жидких систем [6], но и в материаловедении, особенно в технологии полупроводниковых эпитаксиальных структур [7-11]. Среди различных оптических методов для определения параметров поверхностных слоев *in situ* в режиме реального времени широкое распространение получил поляризационно-модуляционный метод, в котором регистрируется относительная разность отражения (так называемая анизотропия отражения) нормально падающего линейно поляризованного света между двумя ортогональными направлениями его поляризации на исследуемой поверхности [7,8,10,11].

Кроме этого способа для динамических ситуаций немалый интерес представляет также метод дифференциального отражения под углом (псевдо)-Брюстера, где измеряется изменение энергетического коэффициента отражения, вызванного модификацией поверхностного слоя [12-18].

Однако брюстеровский подход (который по существу уже давно применяется в оптике для определения показателя преломления прозрачных пленок [19-24]) требует точного установления угла падения. Во многих ситуациях это может оказаться отнюдь не простым, например в том случае, если оптический зонд используется в технически сложных

условиях осаждения. В то же время изменение угла падения нетрудно регистрировать с весьма высокой точностью.

Цель данной работы — показать, каким образом для определения параметров сверхтонких слоев измерения точно под углом Брюстера можно заменить угловым сканированием в окрестности этого угла, так что существенным будет лишь корректное измерение изменения угла, а не точное определение самого угла падения.

Рассмотрим отражение  $p$ -поляризованной плоской волны с вакуумной длиной волны  $\lambda$  в среде  $a$  с диэлектрической проницаемостью  $\varepsilon_a \equiv n_a^2$  от плоскопараллельной слоистой среды, состоящей из полубесконечной подложки с диэлектрической проницаемостью  $\varepsilon_s \equiv n_s^2$  и  $N$  сверхтонких слоев с эффективными толщинами  $d_i$  и локальными эффективными диэлектрическими проницаемостями  $\varepsilon_i \equiv n_i^2$  ( $i = 1-N$ ), так, что  $\varepsilon_{N+1} \equiv \varepsilon_a$ .

Все среды считаем изотропными и полностью прозрачными и все границы раздела геометрическими плоскостями, а магнитные проницаемости всех сред положим равными единице. В таком случае, используя стандартный матричный метод расчета слоистых систем [25], можно пока-

зать, что при выполнении условия  $4\pi \sum_{i=1}^N n_i d_i / \lambda \ll 1$  коэффициент отражения от такой структуры  $R_N^{(p)} = R_0^{(p)} + \Delta R_N^{(p)}$ ,

где  $R_0^{(p)}$  — отражательная способность “чистой” подложки (без поверхностных слоев) выражается формулой Френеля

$$R_0^{(p)} = (n_s \cos \varphi_a - n_a \cos \varphi_s)^2 / (n_s \cos \varphi_a + n_a \cos \varphi_s)^2 \quad (1)$$

и  $\Delta R_N^{(p)}$  — небольшая поправка, обусловленная  $N$  сверхтонкими слоями, описывается с точностью до второго порядка по малым параметрам  $d_i / \lambda$  включительно следующим выражением:

$$\begin{aligned} \Delta R_N^{(p)} = & \frac{16\pi^2 n_a n_s \cos \varphi_a \cos \varphi_s}{(n_s \cos \varphi_a + n_a \cos \varphi_s)^4} \left[ \sum_{i=1}^N \sum_{j=1}^N (\varepsilon_i \cos^2 \varphi_a - \varepsilon_a \cos^2 \varphi_i) \times \right. \\ & \times (\varepsilon_j \cos^2 \varphi_s - \varepsilon_s \cos^2 \varphi_j) \frac{d_i d_j}{\lambda^2} + (\varepsilon_a \cos^2 \varphi_s - \varepsilon_s \cos^2 \varphi_a) \times \\ & \left. \times \sum_{i=1}^{N-1} \sum_{j=i+1}^N (\varepsilon_i \cos^2 \varphi_j - \varepsilon_j \cos^2 \varphi_i) \frac{d_i d_j}{\lambda^2} \right], \quad (2) \end{aligned}$$

где  $\varphi_a$  — угол падения в среде  $a$  и  $\varphi_{i,j,s}$  — углы преломления в средах  $i$ ,  $j$  и  $s$ , причем в случае одного сверхтонкого слоя

( $N = 1$ ) в формуле (2) второй член в квадратных скобках (содержащий суммирование  $\sum_{i=1}^{N-1}$ ) отсутствует.

Далее проанализируем такую ситуацию, когда угол падения  $\varphi_a$  слабо отличается от угла Брюстера  $\varphi_B = \arctg(n_s/n_a)$  для подложки, так что выполняется условие  $\Delta\varphi/\varphi_B \ll 1$ , где  $\Delta\varphi = |\varphi_a - \varphi_B|$ . Пусть первоначально на подложке существует только один сверхтонкий слой с параметрами  $\varepsilon_1$  и  $d_1$ . Рассчитаем величину  $(\Delta R/R_1)^{(p)}$  — относительного изменения коэффициента отражения, которое возникает, если на первый слой наносится второй поверхностный слой с параметрами  $\varepsilon_2$  и  $d_2$ . Во втором порядке по малым параметрам получим:

$$\begin{aligned} \left(\frac{\Delta R}{R_1}\right)^{(p)} &\equiv \frac{(R_0^{(p)} + \Delta R_2^{(p)}) - (R_0^{(p)} + \Delta R_1^{(p)})}{R_0^{(p)} + \Delta R_1^{(p)}} \simeq \\ &\simeq \left(\frac{\Delta R}{R_1}\right)_B^{(p)} \frac{\delta_B^2}{[(\varphi_a - \varphi_B)^2 + \delta_B^2]}, \end{aligned} \quad (3)$$

где

$$\delta_B = \frac{2\pi d_1 n_a n_s \varepsilon_s}{\lambda \varepsilon_1 (\varepsilon_a + \varepsilon_s)^{1/2}} \left| \frac{(\varepsilon_1 - \varepsilon_a)(\varepsilon_1 - \varepsilon_s)}{(\varepsilon_s^2 - \varepsilon_a^2)} \right|, \quad (4)$$

и  $(\Delta R/R_1)_B^{(p)}$  — относительное изменение коэффициента отражения точно при угле Брюстера ( $\varphi_a = \varphi_B$ )

$$(\Delta R/R_1)_B^{(p)} \simeq p(p+2), \quad (5)$$

$$p = \frac{\varepsilon_1(\varepsilon_2 - \varepsilon_a)(\varepsilon_2 - \varepsilon_s)d_2}{\varepsilon_2(\varepsilon_1 - \varepsilon_a)(\varepsilon_1 - \varepsilon_s)d_1}. \quad (6)$$

Таким образом, около угла Брюстера угловой спектр величины  $(\Delta R/R_1)^{(p)}$  приближенно имеет лоренцеву форму с полушириной (шириной линии на полувысоте), равной  $2\delta_B$ .

На основе выражения (4) можно заключить следующее. Во-первых, полуширина углового спектра не зависит от параметров второго сверхтонкого слоя. Следовательно, если известны показатели преломления всех сред, то открывается возможность относительно просто определить толщину сверхтонкого диэлектрического слоя, измеряя для этого около угла Брюстера угловой спектр величины  $(\Delta R/R_1)^{(p)}$ , обусловленный нанесением любого другого прозрачного сверхтонкого слоя на исследуемый слой.

Во-вторых, благодаря тому, что полуширина зависит от толщины первоначального слоя линейно, можно при известной скорости осаждения (роста) экспериментально определить производную  $\partial(\delta_B)/\partial(d_1/\lambda)$  и затем оценить значение

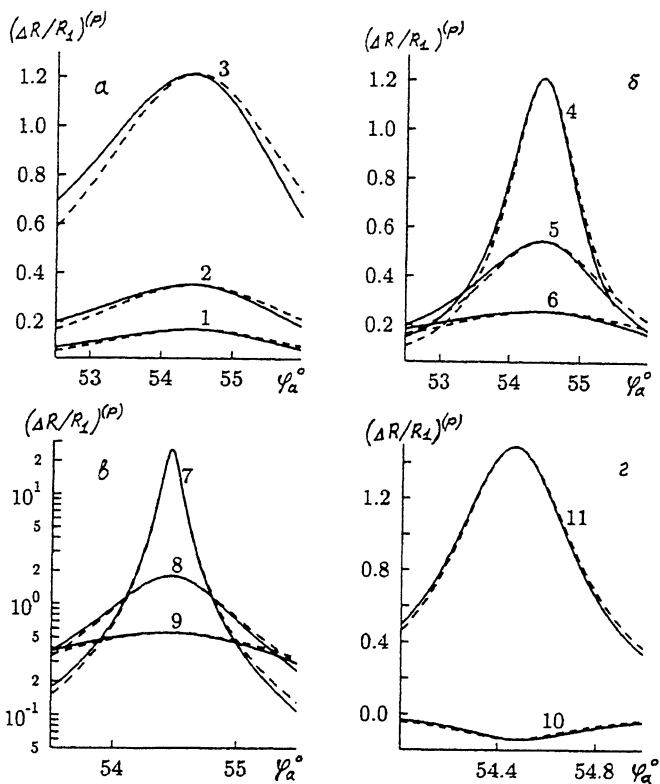


Рис. 1. Зависимость относительного изменения коэффициента отражения  $(\Delta R/R_{\perp})^{\rho}$  от угла падения  $\varphi_{\alpha}$  около угла Брюстера при разных значениях параметров  $d_2/\lambda$  — а,  $d_1/\lambda$  — б,  $n_1$  — в и  $n_2$  — г (штриховые кривые — расчет по приближенной формуле (3)):

$$n_s = 1.4 - 1 \div 11;$$

$$n_1 = 1.6 - 7; 2.0 - 10 \text{ и } 11; 2.2 - 8; 2.4 - 1 \div 6; 3.0 - 9;$$

$$n_2 = 1.3 - 10; 1.8 - 11; 2.0 - 1 \div 9;$$

$$n_a = 1.0 - 1 \div 11;$$

$$d_1/\lambda = 10^{-3} - 4 \text{ и } 7 \div 11; 2 \cdot 10^{-3} - 5; 3 \cdot 10^{-3} - 1 \div 3; 4 \cdot 10^{-3} - 6;$$

$$d_2/\lambda = 5 \cdot 10^{-4} - 1; 10^{-3} - 2 \text{ и } 4 \div 11; 3 \cdot 10^{-3} - 3.$$

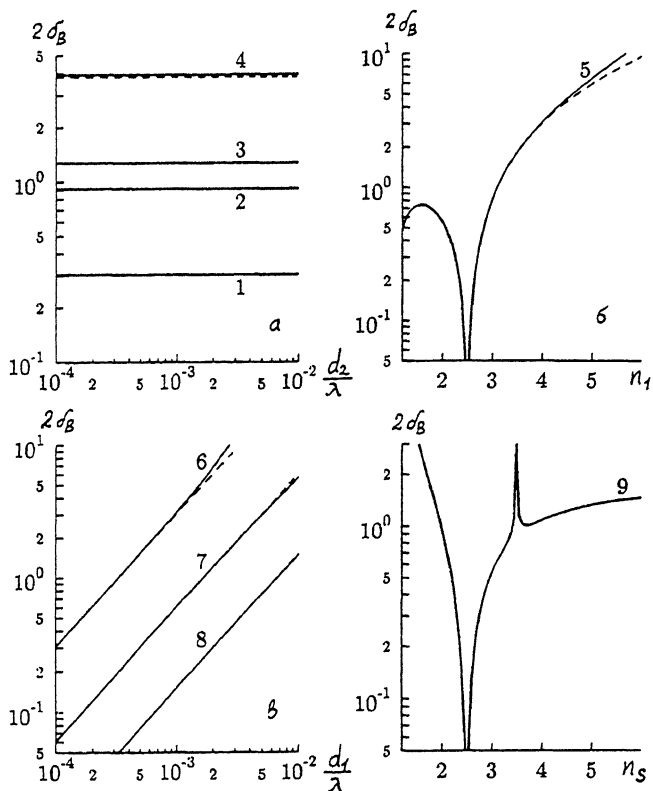


Рис. 2. Зависимость полуширины  $2\delta_B$  углового спектра величины  $(\Delta R/R_1)^{(p)}$  от параметров  $d_2/\lambda$  — а,  $n_1$  — б,  $d_1/\lambda$  — в и  $n_s$  — г (штриховые кривые — расчет по приближенной формуле (4)):

$$n_s = 1.4 - 3 \text{ и } 4; 1.5 - 6; 2.5 - 5 \text{ и } 7; 3.5 - 1 \text{ и } 2; 4.0 - 8;$$

$$n_1 = 2.4 - 1 \text{ и } 4; 2.5 - 9; 3.5 - 6 \div 8;$$

$$n_2 = 2.0 - 1 \div 4 \text{ и } 6 \div 8; 3.5 - 5 \text{ и } 9;$$

$$n_a = 1.0 - 1 \div 9;$$

$$d_1/\lambda = 10^{-3} - 1 \text{ и } 3; 3 \cdot 10^{-3} - 2, 4, 5 \text{ и } 9;$$

$$d_2/\lambda = 10^{-3} - 5 \div 9.$$

диэлектрической проницаемости  $\epsilon_1$  исследуемого сверхтонкого слоя. Недостатком при этом является то обстоятельство, что решение для  $\epsilon_1$  может обладать двумя значениями, имеющими физический смысл.

Для проверки указанных выводов и для оценки точности полученных приближенных выражений проводились и численные расчеты на ЭВМ по точным формулам для коэффициентов отражения (без разложения по малым параметрам), результаты которых представлены графически: зависимость величины  $(\Delta R/R_1)^{(p)}$  от угла падения на рис. 1 и зависимость  $2\delta_B$  от параметров слоев на рис. 2. Эти расчеты показывают, что относительная ошибка приближенных формул не превышает нескольких процентов, если малые параметры  $d_i/\lambda$  и  $\delta_B/\varphi_B$  не больше, чем несколько сотых. Расчеты ясно демонстрируют и тот очевидный факт, что значение величины  $(\Delta R/R_1)^{(p)}$  тем больше, чем меньше  $d_1/\lambda$  и больше  $d_2/\lambda$  (рис. 1, а и б).

Рассмотрим теперь вопрос одновременного определения показателя преломления и толщины сверхтонкого слоя. Для этого необходимо включить измерение еще одной независимой величины. В динамических ситуациях в качестве последней можно использовать величину  $(\Delta R_1/R_0)_B^{(s)}$  — относительное изменение коэффициента отражения  $s$  — поляризованного света от подложки, вызванное нанесением исследуемого слоя (слоя 1), при угле Брюстера.

Применение  $s$ -поляризации является целесообразным потому, что она имеет слабую угловую зависимость около  $\varphi_B$  и, следовательно, не требует очень точного определения угла падения (отметим, что возможность использования коэффициента отражения  $p$ -поляризованного света  $R_B^{(p)} \equiv \Delta R_1^{(p)}(\varphi_a = \varphi_B)$  от первого (исследуемого) сверхтонкого слоя ровно под углом Брюстера уже в принципе отпадает, поскольку из (2) и (4) следует, что  $R_B^{(p)} = \delta_B^2(\varepsilon_s^2 - \varepsilon_a^2)^2/4\varepsilon_a\varepsilon_s^3$ , т. е.  $R_B^{(p)}$  и  $\delta_B$  не оказываются независимыми величинами). Так же, как выведена формула (2), получим

$$\begin{aligned} \left(\frac{\Delta R_N}{R_0}\right)^{(s)} &\simeq \frac{16\pi^2 n_a n_s \cos \varphi_a \cos \varphi_s}{(\varepsilon_s - \varepsilon_a)^2} \times \\ &\times \left[ \sum_{i=1}^N \left( \sum_{j=1}^N (\varepsilon_i - \varepsilon_a)(\varepsilon_j - \varepsilon_s) \frac{d_i d_j}{\lambda^2} \right) + \right. \\ &\left. + (\varepsilon_a - \varepsilon_s) \sum_{i=1}^{N-1} \left( \sum_{j=i+1}^N (\varepsilon_i - \varepsilon_j) \frac{d_i d_j}{\lambda^2} \right) \right] \end{aligned} \quad (7)$$

и затем из (4) и (7) заключим, что

$$\varepsilon_1 = \left[ \varepsilon_a + \varepsilon_s \pm \left( (\varepsilon_s - \varepsilon_a)^2 + 4\varepsilon_a \varepsilon_s p \right)^{1/2} \right] [2(1-p)]^{-1}, \quad (8)$$

$$p = 4\varepsilon_s^{-2} (\varepsilon_a + \varepsilon_s)^2 \delta_B^2 / (\Delta R_1 / R_0)_B^{(s)}. \quad (9)$$

Но следует иметь в виду, что в определенном случае оба решения (8) обладают физическим смыслом, как и в том случае, если для определения  $\varepsilon_1$  применяются два различных угла падения [26], и, таким образом, для выяснения истинного значения  $\varepsilon_1$  требуется дополнительный анализ (или измерение).

В заключение отметим, что самым интересным результатом данной работы является тот факт, что в фотометрии сверхтонких слоев прозрачных сред измеряемая в эксперименте величина может быть  $\sim d_1/\lambda$ , т. е. пропорциональна первым порядкам характеристического малого параметра слоя. Другими словами, найден фотометрический метод измерения, чувствительность которого в принципе такая же, как у эллипсометрии, где обусловленная сверхтонким слоем поправка к определяемой в эксперименте величине — к отношению комплексных амплитудных коэффициентов отражения  $p$ - и  $s$ -поляризованного света — также  $\sim d_1/\lambda$  [27].

### Список литературы

- [1] Wormeester H., Wentink D.J., de Boej P.L. et al. // Phys. Rev. B. 1993. V. 47. N 19. P. 12663–12671.
- [2] Kamiya I., Aspnes D.E., Florez L.T., Harbison J.P. // Phys. Rev. B. 1992. V. 46. N 24. P. 15894–15904.
- [3] Chiarotti G. // Surf. Sci. 1994. V. 299/300. P. 541–550.
- [4] Shen Y.R. // Surf. Sci. 1994. V. 299/300. P. 551–562.
- [5] Moon J.A., Tauc J. // J. Appl. Phys. 1993. V. 73. N 9. P. 4571–4578.
- [6] Кузьмин В.Л., Романов В.П., Михайлов А.В. // Опт. и спектр. 1992. Т. 73. В. 1. С. 3–47.
- [7] Optical Characterization of Epitaxial Semiconductor Layers / Ed. by G. Bauer, W. Richter. Berlin, Heidelberg: Springer-Verlag, 1996. 429 p.
- [8] Aspnes D.E. // Surf. Sci. 1994. V. 307–309. P. 1017–1027.
- [9] Drévuillon B. // Appl. Surf. Sci. 1993. V. 63. P. 27–34.
- [10] Deppert K., Jönsson J., Samuelson L. // Thin Solid Films. 1993. V. 224. P. 133–136.
- [11] Armstrong S.R., Hoare R.D., Pemble M.E. et al. // J. Crystal Growth. 1992. V. 124. P. 37–43.
- [12] Schaaf P., Dejardin P., Schmitt A. // Langmuir. 1987. V. 3. P. 1131–1135.
- [13] Fauchet P.M. // IEEE J. Quantum Electron. 1989. V. 25. N 5. P. 1072–1078.
- [14] Nishi K., Usui A., Sakaki H. // Thin Solid Films. 1993. V. 225. P. 47–52.
- [15] Kobayashi R., Narahara S., Ishikawa K., Hasegawa F. // Jpn. J. Appl. Phys. 1993. V. 32. Part. 2. N 2A. P. L164–L166.
- [16] Dietz N., Lewerenz H.J. // Appl. Surf. Sci. 1993. V. 69. P. 350–354.

- [17] *Никитенко А.А., Саверанский В.В.* // *Опт. и спектр.* 1994. Т. 76. N 6. С. 1005-1007.
- [18] *Van der Zeeuw E.A., Koper G.J.M., Bedeaux D.* // *Progr. Colloid Polym. Sci.* 1995. V. 98. P. 291-294.
- [19] *Abeles F.* *Progress in Optics.* V. 2. Amsterdam: North Holland Publ., 1963. P. 249.
- [20] *Наскайло М.* // *J. Opt. Soc. Amer.* 1964. V. 54. N 2. P. 198-203.
- [21] *Oliver W.R.* // *Phil. Mag.* 1970. V. 21. P. 1229-1235.
- [22] *Burns W.K., Lee A.B.* // *J. Opt. Soc. Amer.* 1974. V. 64. N 1. 108-109.
- [23] *Бугнин Г.А.* // *Опт. и спектр.* 1974. Т. 37. В. 1. С. 197-198.
- [24] *Wu Q.H., Hodgkinson I.* // *J. Opt. Soc. Amer. A.* 1993. V. 10. N 9. P. 2072-2075.
- [25] *Macleod H.A.* *Thin-film optical filters.* Bristol: Adam Hilger Ltd., 1986. 519 p.
- [26] *Адамсон П.В.* // *Письма в ЖТФ.* 1995. Т. 21. В. 14. С. 69-76.
- [27] *Drude P.* // *Lehrbuch der Optik.* Leipzig: Verlag von S. Hirzel, 1912.

Поступило в Редакцию  
13 июня 1996 г.

---