07;12

Мониторинг (осаждаемой) интерференционной пленки методом дифференциального отражения света

© П.В. Адамсон

Институт физики, Тарту

Поступило в Редакцию 15 января 1998 г.

Исследуется изменение отражения (дифференциальное отражение) света от интерференционной пленки в результате нанесения на нее сверхтонкого слоя. Методом возмущений получены формулы, описывающие дифференциальное отражение около минимумов и максимумов отражательной способности пленки. Показано, что эти формулы и соответствующие дифференциальные измерения дают возможность легко и однозначно определить толщину и показатель преломления не только сверхтонких поверхностных слоев, но и самих интерференционных пленок. Применение рассматриваемого метода оказывается особенно удобным в мониторинге процесса осаждения тонкопленочных структур.

В настоящее время среди многих оптических способов для исследования приповерхностной области разных материалов и осуществления технического контроля над процессом осаждения (выращивания) тонкопленочных структур весьма интенсивно используются дифференциальные отражательные методы, в которых регистрируется изменение отраженного сигнала, обусловленное исследуемым поверхностным слоем [1-6]. Поскольку актуальные применения методов оптического зондирования прежде всего связаны с полупроводниковой технологией, то в основном развивались методы, работающие лишь при наличии поглощения (в поверхностном слое или в подложке). Более того, в литературе, главным образом благодаря некорректному теоретическому анализу, проведенному в работе [7] относительно слабопоглощающих и прозрачных веществ, нередко высказывается мнение, что дифференциальное отражение вообще можно использовать для исследования сверхтонких слоев только в случае сильнопоглощающих материалов [8,9].

78

Однако, как показано в [10,11], такая точка зрения является неправильной, и изменение отражательной способности, вызванное нанесением сверхтонкого диэлектрического слоя на прозрачную подложку, также является измеряемой величиной при определенных условиях. К тому же существование развитой интерференции в прозрачных пленках открывает ряд новых возможностей, например позволяет улучшить отношение сигнал/шум и повысить чувствительность метода дифференциального отражения [12].

Цель данной работы — показать, каким образом с помощью дифференциального отражения *p*- и *s*-поляризованного света можно одновременно определить параметры прозрачных интерференционных пленок и наносимых на них сверхтонких диэлектрических слоев.

Рассмотрим небольшое изменение отражательной способности плоской линейно-поляризованной электромагнитной волны с вакуумной длиной волны λ от интерференционной пленки f с толщиной d_f на полубесконечной подложке s в окружающей среде a, возникающее в результате нанесения на пленку f сверхтонкого слоя c с толщиной $d_c \ll \lambda$. Все среды считаем изотропно-однородными и полностью прозрачными, описываемыми действительными макроскопическими диэлектрическими постоянными $\varepsilon_{a,c,f,s} \equiv n_{a,c,f,s}^2$, а магнитные проницаемости всех веществ положим равными единице. Также предположим, что все границы раздела являются геометрическими плоскостями — переходные слои и шероховатость отсутствуют. Тогда, используя стандартную технику расчета слоистых сред [13], получим при условии $4\pi n_c d_c/\lambda \ll 1$, что относительное изменение интенсивности отраженного сигнала $(\Delta I/I_0)^{(s,p)} \equiv [(I_1 - I_0)/I_0]^{(s,p)} = [(R_1I_g - R_0I_g)/R_0I_g]^{(s,p)} = [(R_1 - I_0)/R_0]^{(s,p)}$ $(-R_0)/R_0]^{(s,p)} \equiv (\Delta R/R_0)^{(s,p)}$, где $R_1\{I_1\}$ и $R_0\{I_0\}$ — коэффициенты отражения (интенсивности) s- или p-поляризованного света от пленки f с поверхностным слоем с и без этого слоя соответственно и I_g интенсивность падающего света, выражается в первом порядке по d_c/λ следующим образом:

$$(\Delta R/R_0)^{(s,p)} \simeq -32\pi n_a n_f^3 n_s \cos \varphi_a \cos^3 \varphi_f \cos \varphi_s$$

 $\times \sin 2\beta (L/M) (d_c/\lambda),$ (1)

$$L = (\varepsilon_c t_a - \varepsilon_a t_c)(\varepsilon_s t_f - \varepsilon_f t_s), \tag{2}$$

$$M = \left[(\varepsilon_f t_a + \varepsilon_a t_f - \nu) (\varepsilon_s t_f - \varepsilon_f t_s) + (\varepsilon_f t_s + \varepsilon_s t_f - \nu) (\varepsilon_f t_a - \varepsilon_a t_f) \right]^2 + 4\varepsilon_f \varepsilon_s \cos^2 \varphi_f \cos^2 \varphi_s (\varepsilon_f t_a - \varepsilon_a t_f)^2 \sin^2 2\beta,$$
(3)

где $t_i = 1$ и $v = 2\varepsilon_a \sin^2 \varphi_a$ для *s*-поляризации и $t_i = \cos^2 \varphi_i = 1 - (\varepsilon_a/\varepsilon_i) \sin^2 \varphi_a$ и v = 0 для *p*-поляризации (i = a, c, f, s), $\beta = (2\pi/\lambda)n_f d_f \cos \varphi_f$, φ_a — угол падения светового луча в окружающей среде *a*.

Зависимость величин $(\Delta R/R_0)_{ex}^{(s,p)}$ от d_f и φ_a , рассчитанных по точным классическим формулам (без разложения по малому параметру d_c/λ) для плоскослоистой среды, и относительных ошибок $V^{(s,p)} = [(\Delta R/R_0)_{ex}^{(s,p)} - (\Delta R/R_0)^{(s,p)}]/(\Delta R/R_0)_{ex}^{(s,p)}$ (где $(\Delta R/R_0)^{(s,p)}$ рассчитано по приближенному выражению (1)) приведена на рис. 1. Такие сравнительные расчеты показывают, что в области, где $(\Delta R/R_0)^{(s,p)} \to 0$, формула (1) не работает, но в окружности интерференционных экстремумов учет в разложении только членов первого порядка дает достаточно хорошую точность.

Далее рассмотрим, какой вид получает формула (1) около минимумов и максимумов коэффициента отражения $R_0^{(s,p)}$. Если толщина интерференционной пленки $d_f = d_f^{(N)} + \Delta d_f$, где $d_f^{(N)} = N\lambda/(4n_f \cos \varphi_f)$, N — целое число и выполняются условия $4\pi n_f |\Delta d_f| \lambda^{-1} \ll 1$ и $\Delta d_f \gg d_c$, то для четных N = 2j, j = 0, 1, 2, ...

$$(\Delta R/R_0)_{2j}^{(s,p)} \simeq -\mathcal{K}L/(\varepsilon_s t_a - \varepsilon_a t_s)^2 (d_c \Delta d_f/\lambda^2), \tag{4}$$

где $\mathcal{K} = 32\pi^2 n_a n_s \cos \varphi_a \cos \varphi_s$. В случае *р*-поляризации формула (4) не работает в том случае, если свет падает под углом Брюстера для подложки, т. е. при $\varphi_a = \varphi_B = \operatorname{arctg}(n_s/n_a)$, когда $\varepsilon_s t_a - \varepsilon_a t_s = 0$. Тогда

$$(\Delta R/R_0)_{2j}^{(p)} \simeq 2 \left[\varepsilon_f (\varepsilon_c - \varepsilon_a) (\varepsilon_s - \varepsilon_c) \right] / \left[\varepsilon_c (\varepsilon_f - \varepsilon_a) (\varepsilon_s - \varepsilon_f) \right] \left(d_c / \Delta d_f \right).$$
(5)

Для нечетных N = 2j + 1

$$(\Delta R/R_0)_{2j+1}^{(s,p)} \simeq \mathcal{K}\varepsilon_f^2 \cos^4 \varphi_f(L/M_{s,p}^2) (d_c \Delta d_f/\lambda^2), \tag{6}$$

$$M_s = \varepsilon_a \varepsilon_s - \varepsilon_f^2 + \varepsilon_a (2\varepsilon_f - \varepsilon_a - \varepsilon_s) \sin^2 \varphi_a,$$
 (7)

$$M_{p} = \varepsilon_{a}\varepsilon_{s} - \varepsilon_{f}^{2} + \left(\varepsilon_{a}\varepsilon_{f}^{2}\varepsilon_{s}^{-1} + \varepsilon_{f}^{2} - 2\varepsilon_{a}^{2}\varepsilon_{f}^{-1}\varepsilon_{s}\right)\sin^{2}\varphi_{a} + \left(\varepsilon_{a}^{3}\varepsilon_{f}^{-2}\varepsilon_{s} - \varepsilon_{a}\varepsilon_{f}^{2}\varepsilon_{s}^{-1}\right)\sin^{4}\varphi_{a}.$$
(8)

Однако формула (6) неправильна в случае *s*-поляризации тогда, когда $M_s \to 0$ и для *p*-поляризации в том случае, если $M_p \to 0$. Если угол падения и параметры слоев подобраны таким образом, что выполняется



Рис. 1. Зависимость относительного изменения коэффициента отражения $(\Delta R/R_0)_{\rm ex}^{(p,s)}$ и относительной ошибки $V^{(p,s)}$ для *p*-поляризации (сплошные кривые) и *s*-поляризации (штриховые кривые) от толщины интерференционной пленки d_f (*a*, *c*) и угла падения света φ_a (*b*, *d*). $n_a = 1.0$, $n_c = 2.0$, $n_f = 1.5$, $n_s = 2.5$, $d_c/\lambda = 10^{-3}$, $\varphi_a = 30^{\circ}$ (*a*, *c*), $d_f/\lambda = 0.6$ (*b*, *d*).

условие $M_s = 0$ или условие $M_p = 0$, то

$$\left(\Delta R/R_0\right)_{2j+1}^{(s,p)} \simeq 2(n_a \cos \varphi_a/n_s \cos \varphi_s) L \Big/ (\varepsilon_f t_a - \varepsilon_a t_f)^2 (d_c/\Delta d_f).$$
(9)

Заметим, что условия $M_{s,p} = 0$ возможно выполнить далеко не всегда, например, в случае *s*-поляризации при наклонном падении для этого должно иметь место соотношение $n_f < \sqrt{n_a n_s}$ (при нормальном падении $n_f = \sqrt{n_a n_s}$ [13]).

Тот факт, какой экстремум (минимум или максимум) соответствует для четных N и какой для нечетных N определяется при $\varepsilon_{f,s} > \varepsilon_a \sin^2 \varphi_a$ условиями

$$(-1)^{N}(n_{a}-n_{f})(n_{f}-n_{s}) < 0$$
(10)

для s-поляризации и

$$(-1)^{N}(n_{a}\cos\varphi_{f}-n_{f}\cos\varphi_{a})(n_{f}\cos\varphi_{s}-n_{s}\cos\varphi_{f}) \stackrel{<}{>} 0 \qquad (11)$$

для *p*-поляризации, где верхний знак соответствует минимуму и нижний максимуму. Их этих условий, например, следует, что формулы (5) и (9) всегда описывают изменение отражения около минимума $R_0^{(s,p)}$ (последнее ясно, конечно, и из более простых соображений, именно при $M_s = 0$ коэффициент отражения $R_0^{(s)} = 0$ для *s*-поляризации, а при $\varphi_a = \varphi_B$ или $M_p = 0$ имеет место равенство $R_0^{(p)} = 0$ в случае *p*-поляризации). Как видно из (5) и (9), около этих минимумов относительное изменение коэффициента отражения имеет обратно пропорциональную зависимость от Δd_f и вообще не зависит (если не учитывать дисперсию) от длины волны света. В качестве конкретного примера зависимость ($\Delta R/R_0$)^(s,p) и V^(s,p) от Δd_f около минимумов и максимумов $R_0^{(s,p)}$ для угла падения $\varphi_a = \varphi_B$ приведена на рис. 2.

Обратим внимание на следующее, на практике весьма важное обстоятельство. Как известно [14], в случае полубесконечной подложки можно получить высокую чувствительность методом дифференциального отражения лишь с *p*-поляризованным светом, падающим под углом Брюстера, так как коэффициент отражения от гладкой подложки без поверхностного слоя стремится тогда к нулю. В случае интерференционной пленки, однако, такая же возможность открывается



Рис. 2. Зависимость величин $(\Delta R/R_0)_{ex}^{(p,s)}$ и $V^{(p,s)}$ от Δd_f около интерференционных минимумов (сплошные кривые) и максимумов (штриховые кривые), если $n_a = 1.0$, $n_c = 2.5$, $n_f = 2.0$, $n_s = 1.5$, $\varphi_a = \arctan 1.5$ и $d_c/\lambda = 10^{-3}$.

и для *s*-поляризованного света, поскольку при выполнении условия $n_f < \sqrt{n_a n_s}$ можно найти такой угол падения, где первоначальный коэффициент отражения от чистой пленки $R_0^{(s)} \to 0$.

Основная ценность формул (4)–(9) состоит в том, что они дают возможность легко решить обратную задачу — определить однозначно параметры пленки f и поверхностного слоя c при известных ε_s и ε_a , измеряя для этого лишь величины $(\Delta R/R_0)^{(s)}$ и $(\Delta R/R_0)^{(p)}$ около минимума и максимума отражательной способности $R_0^{(s,p)}$. Параметр ε_f

проще всего получается с помощью *s*-поляризованного света, определяя в эксперименте величину $g_f = [-(\Delta R/R_0)_{2j}^{(s)}/(\Delta R/R_0)_{2j+1}^{(s)}]^{1/2}/2$ и затем рассчитывая ε_f по формуле

$$\varepsilon_f = g_f(\varepsilon_s - \varepsilon_a) + \varepsilon_a \sin^2 \varphi_a + \left[g_f^2(\varepsilon_s - \varepsilon_a)^2 + \varepsilon_a \cos^2 \varphi_a (\varepsilon_s - \varepsilon_a \sin^2 \varphi_a) \right]^{1/2}.$$
(12)

Диэлектрическую постоянную ε_c можно определить следующим образом: измерить отношение $g_c = (\Delta R/R_0)_{2j}^{(p)}/(\Delta R/R_0)_{2j}^{(s)}$ и использовать выражение

$$\varepsilon_c = \varepsilon_a \Big[(g'_c + 1) + \left((g'_c + 1)^2 - 4(g'_c + \cos^2 \varphi_a) \sin^2 \varphi_a \right)^{1/2} \Big] \\ \times \Big[2 \left(g'_c + \cos^2 \varphi_a \right) \Big]^{-1}, \tag{13}$$

где

$$g_c' = g_c(\varepsilon_s \cos^2 \varphi_a - \varepsilon_a \cos^2 \varphi_s)^2(\varepsilon_f - \varepsilon_s) \Big/ \Big[(\varepsilon_s \cos^2 \varphi_f - \varepsilon_f \cos^2 \varphi_s)(\varepsilon_s - \varepsilon_a)^2 \Big].$$

Применяя соотношение

$$\Delta d_f / \lambda = \frac{g_\Delta (\varepsilon_a + \varepsilon_s)^{1/2} (\varepsilon_f^2 + \varepsilon_a \varepsilon_f + \varepsilon_f \varepsilon_s - \varepsilon_a \varepsilon_s)}{4\pi \varepsilon_f (\varepsilon_a \varepsilon_f + \varepsilon_f \varepsilon_s - \varepsilon_a \varepsilon_s)},$$
(14)

где $g_{\Delta} = [-(\Delta R/R_0)_{2j+1}^{(p)}/(\Delta R/R_0)_{2j}^{(p)}]^{1/2}$ и определяется экспериментально при угле падения $\varphi_a = \varphi_B$, получим величину $\Delta d_f/\lambda$. При этом очень полезным оказывается тот факт, что формула (14) не зависит от параметров наносимого поверхностного слоя, следовательно, если ε_f известно, то для определения $\Delta d_f/\lambda$ достаточно знать лишь то, что наносимый слой является диэлектрическим и сверхтонким.

Такого типа диагностику с помощью дифференциального отражения особенно удобно использовать в мониторинге циклического процесса осаждения пленки, где толщина пленки постоянно малым шагом увеличивается, и нетрудно для каждого цикла измерить величины $(\Delta R/R_0)^{(s,p)}$ около минимумов и максимумов коэффициента отражения $R_0^{(s,p)}$. Если процесс выращивания содержит два различных цикла 1 и 2, в течение

которых на поверхности пленки формируются два поверхностных слоя с параметрами ε_{c1} , d_{c1} и ε_{c2} , d_{c2} соответственно, то для некоторого качественного анализа можно использовать и соотношение

$$(\Delta R_1 / \Delta R_2)^{(s)} \simeq (d_{c1} / d_{c2}) (\varepsilon_{c1} - \varepsilon_a) (\varepsilon_{c2} - \varepsilon_a)^{-1}$$
(15)

для любого угла падения около максимумов (минимумов, у которых $M_s \neq 0$) или соотношение

$$\left(\frac{\Delta R_1}{\Delta R_2}\right)^{(p)} \simeq \frac{d_{c1}\varepsilon_{c2}(\varepsilon_{c1} - \varepsilon_a)(\varepsilon_{c1} - \varepsilon_s)}{d_{c2}\varepsilon_{c1}(\varepsilon_{c2} - \varepsilon_a)(\varepsilon_{c2} - \varepsilon_s)}$$
(16)

для угла падения $\varphi_a = \varphi_B$ около минимумов. Так как величины $(\Delta R_1/\Delta R_2)^{(s,p)}$ не зависят от толщины выращиваемой пленки, то в случае стабильного процесса они должны иметь постоянные значения. Из (15) видно также, что $(\Delta R_1/\Delta R_2)^{(s)}$ не зависит от типа подложки, в то же время с измерением $(\Delta R_1/\Delta R_2)^{(p)}$ для разных подложек можно определить и параметры поверхностных слоев. Это еще раз показывает, что с точки зрения диагностики самой эффективной является работа с *p*-поляризованным светом под углом Брюстера. Заметим еще, что, в принципе, интерференционная пленка, толщина которой только слегка отличается от толщины $d_f^{(N)}$, может быть применена в качестве простого и весьма чувствительного элемента в разного рода оптических системах дистанционного зондирования.

В заключение сформулируем основной результат данной работы: показано, что идеология дифференциальных измерений, теоретической основой которой является метод возмущений, применима не только для исследования сверхтонких поверхностных слоев, но и для определения параметров интерференционных пленок.

Список литературы

- [1] *Herman I.P.* Optical Diagnostics for Thin Film Processing. New York: Academic Press, 1996. 783 p.
- [2] Optical characterization of Epitaxial Semiconductor Layers / Ed. by G. Bauer, W. Richter. Berlin: Springer-Verlag, 1996. 429 p.
- [3] Mantese L., Rossow U., Aspnes D.E. // Appl. Surf. Sci. 1996. V. 107. P. 35-41.
- [4] Uwai K., Kobayashi N. // Appl. Surf. Sci. 1996. V. 107. P. 42-47.

- [5] Bleckmann L., Hunderi O., Richter W., Wold E. // Surf. Sci. 1996. V. 351.
 P. 277–284.
- [6] Brunner H., Mayer U., Hoffmann H. // Appl. Spectrosc. 1997. V. 51. N 2.
 P. 209–217.
- [7] McIntyre J.P.E., Aspnes D.E. // Surf. Sci. 1971. V. 24. P. 417-434.
- [8] McGilp J.F. // J. Phys.: Condens. Matter. 1990. V. 2. P. 7985-8006.
- [9] Pemble M.E., Armstrong S.R., Curry S.M. et al. // Faraday Discuss. 1993. V. 95.
 P. 199–217.
- [10] Адамсон П.В. // Опт. и спектр. 1996. Т. 80. В. 3. С. 512-523.
- [11] Rosental A., Adamson P., Gerst A., Niilisk A. // Appl. Surf. Sci. 1996. V. 107. P. 178–183.
- [12] Адамсон П.В. // Опт. и спектр. 1997. Т. 82. В. 3. С. 440-446.
- [13] Борн М., Вольф Э. Основы оптики. М., 1973. 720 с.
- [14] Schaaf P., Dejardin Ph., Schmitt A. // Rev. Phys. Appl. 1986. V. 21. P. 741-745.