

02;07

## Волноводная спектроскопия тонких пленок

© А.В. Хомченко

Институт прикладной оптики НАН Беларуси, Могилев  
E-mail: ipo@physics.belpak.mogilev.by

Поступило в Редакцию 19 июня 2000 г.

В окончательной редакции 13 ноября 2000 г.

Рассмотрен волноводный метод измерения спектров поглощения тонких пленок в области их прозрачности. Приведены спектры поглощения тонких пленок оксида олова и цинка в диапазоне длин волн 400–800 nm. Ошибка измерения спектра поглощения пленки толщиной  $\sim 0.1 \mu\text{m}$  не превышала 5% при значениях коэффициента поглощения  $\sim 50 \text{ cm}^{-1}$ . Обсуждаются возможности и ограничения метода.

Электрические и оптические свойства полупроводниковых и диэлектрических тонкопленочных структур в значительной мере определяются характеристиками и распределением электронных состояний внутри запрещенной зоны. Для поликристаллических и аморфных пленочных материалов, которые изготавливаются в неравновесных условиях и параметры которых зависят от особенностей их осаждения, такие данные можно получить только путем экспериментальных измерений. Некоторую информацию в этом плане дает оптическая спектроскопия в области частот ниже края фундаментального поглощения. Однако с помощью существующих оптических методов затруднительно измерить поглощение в тонких пленках при значениях коэффициента поглощения  $\alpha < 10 \text{ cm}^{-1}$ . Это связано с тем, что непосредственное измерение поглощения при  $\alpha d \ll 1$ , где  $d$  — толщина пленки, становится неточным. Измерения фотопроводимости, позволяющие определять параметры материала при значениях коэффициента поглощения  $\alpha \approx 1 \text{ cm}^{-1}$  для полупроводниковых материалов, малоприменимы для диэлектрических пленок. Поэтому затрачивается немало усилий для того, чтобы разработать более совершенные методы исследования тонких пленок [1].

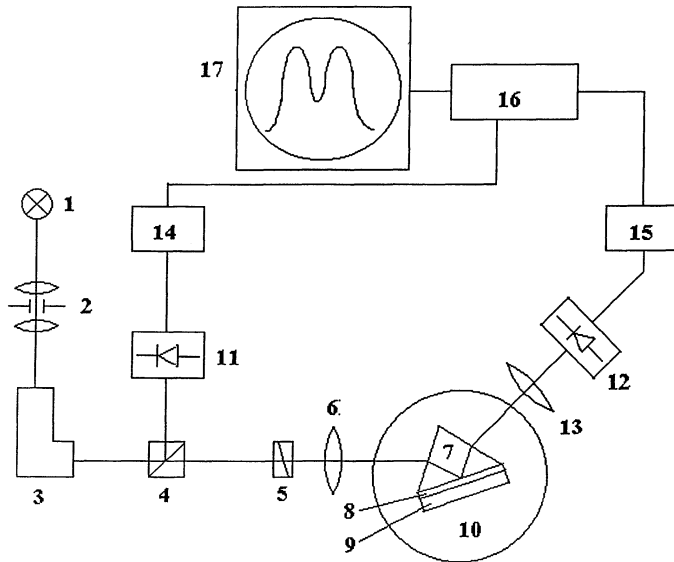
В то же время волноводные методы являются прецизионными методами диагностики тонких пленок. Их преимуществом является высокая разрешающая способность и возможность прямого определения показателя преломления пленок толщиной от нескольких десятых

долей до десятков микрометров. Попытки определения спектрального коэффициента поглощения пленок были предприняты в рамках спектроскопии поверхностных электромагнитных волн [2], которая позволяла исследовать колебательные спектры мономолекулярных слоев и естественных окисных слоев на поверхности металлов. Этот метод достаточно эффективен в инфракрасной области спектра. В видимой области длин волн для спектроскопии поглощающих пленок было предложено использовать моды оптического волновода [3]. В этом случае исследуемые пленки располагались на поверхности волновода, при этом наблюдаемое ослабление света внутри волновода определялось его поглощением в исследуемой пленке вследствие проникновения поля волноводной моды в прилегающие к нему среды. Этот метод давал удовлетворительные результаты для сверхтонких пленок ( $10 \dots 15 \text{ \AA}$ ). Для определения спектрального коэффициента поглощения тонких пленок были выполнены прямые измерения действительной  $h'$  и мнимой частей  $h''$  постоянной распространения  $h$  волноводных мод с применением двухпризменной схемы [4]. К сожалению, необходимость дополнительной юстировки призмленного элемента связи после перестройки падающего излучения по частоте и зависимость  $h''$  от эффективности связи призмы с волноводом ограничили применение этого метода.

В той или иной мере все эти проблемы устраняются при использовании метода волноводной спектроскопии, изложенного в настоящей работе. Предлагаемый подход к измерению спектров поглощения тонких пленок является развитием ранее выполненных работ [5,6] на случай немонахроматического излучения и основан на регистрации пространственного Фурье-спектра светового пучка, отраженного от призмленного элемента связи при возбуждении волноводной моды в исследуемой тонкопленочной структуре. Анализ экспериментальных результатов показал, что при ограничении спектральной ширины зондирующего излучения до значений менее  $60 \text{ nm}$  и использовании соответствующей оптической схемы ошибка определения постоянной распространения волноводной моды по отношению к величине  $h''$ , измеренной на длине волны лазерного излучения, не превышала 1%. Очевидно, что влияние степени когерентности на точность восстановления параметров волноводных мод требует дополнительных исследований ввиду того, что формирование картины распределения интенсивности в сечении отраженного пучка связано с интерференцией световых полей. Однако результаты измерений свидетельствуют о том, что данный метод позволяет определять спектральный коэффициент поглощения тонких

пленок в достаточно широком диапазоне длин волн, тем более что сам призмный элемент возбуждения оптического волновода ограничивает спектральную полосу пропускания до 10–40 nm [7].

При возбуждении волноводных мод на экране можно наблюдать серию темных  $m$ -линий. При этом каждая отдельно взятая линия, наблюдаемая в отраженном свете, имеет свое индивидуальное пространственное распределение интенсивности [5]. При соответствующем подборе параметров возбуждающего светового пучка ее можно легко зарегистрировать. Для проведения подобных исследований была создана установка, принципиальная схема которой приведена на рис. 1. Регистрируемой величиной является интенсивность пучка, отраженного



**Рис. 1.** Принципиальная схема измерительной установки: 1 — источник излучения регулируемой интенсивности; 2 — коллиматор; 3 — монохроматор; 4 — делительный кубик; 5 — поляризатор; 6 — фокусирующий элемент; 7 — призмный элемент связи; 8 — тонкопленочный волновод; 9 — подложка; 10 — поворотный столик; 11, 12 — фотоприемники; 13 — оптический элемент, осуществляющий Фурье-преобразование; 14, 15 — блок измерения интенсивности; 16 — аналого-цифровой преобразователь; 17 — ЭВМ.

от призмного устройства связи, при фиксированном угле падения. Ограниченный световой пучок от источника излучения перестраиваемой частоты падает на призмный элемент связи (7), который представляет собой равнобедренную измерительную призму, смонтированную на поворотном столике (10), и возбуждает в пленке (9) волноводную моду, комплексная постоянная распространения  $h$  которой зависит от оптических параметров и толщины пленки. Призма была изготовлена из оптического стекла ТФ 12 с показателем преломления 1.77905 на длине волны  $0.6328 \mu\text{m}$ . Измерения можно проводить с использованием излучения различной поляризации. Конструкция установки позволяла изменять радиус светового пучка в пределах от 15 до  $150 \mu\text{m}$ . Поперечные размеры пучка измерялись по уровню интенсивности  $I = I_0 e^{-1}$ , где  $I_0$  — интенсивность в центре пучка. Тестируемый образец (9) прижимался к измерительной призме таким образом, чтобы были обеспечены оптимальные условия возбуждения в нем оптической моды. Измерение пространственного распределения интенсивности отраженного светового пучка осуществлялось с помощью линейки фотоприемников (12), ось вращения которой сопряжена с осью поворотного столика, а приемная площадка расположена в фокальной плоскости объектива (13), через который проходит отраженный световой пучок. Интенсивность падающего светового пучка контролировалась с помощью фотоприемника (11). После цифровой обработки сигнал поступал в оперативную память ЭВМ. Приборная ошибка определения угла возбуждения моды составляла  $2 \cdot 10^{-5}$ , интенсивности светового потока — 0.1 %.

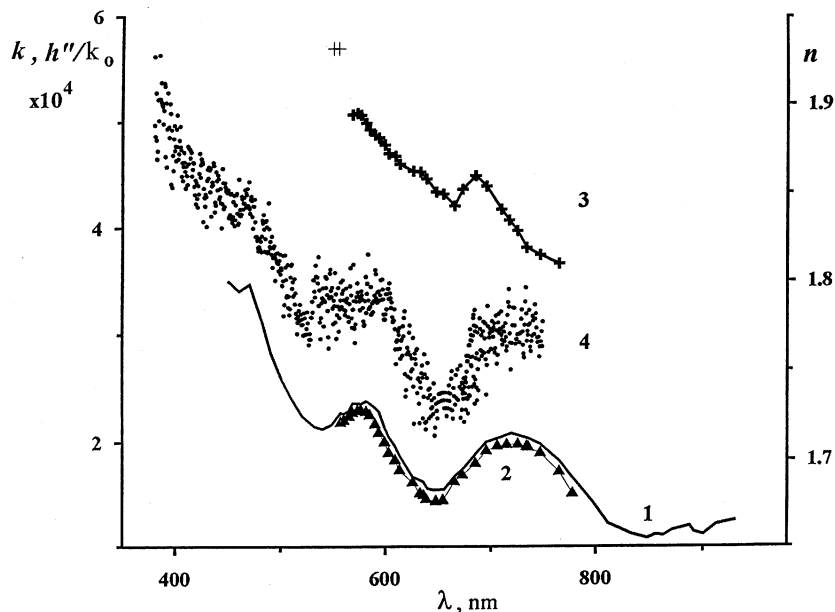
В ходе измерений при перестройке зондирующего излучения по частоте происходит трансформация формы регистрируемого распределения интенсивности. Использование метода градиентного спуска, возможность применения которого при восстановлении параметров мод теоретически обоснована в [6], позволяет определить действительную  $h'$  и мнимую  $h''$  части постоянной распространения в случае несимметричной кривой распределения интенсивности отраженного пучка. Показатель преломления, коэффициент поглощения материала и толщину пленки можно найти, используя значения  $h$  для различных мод [6]. При этом следует подчеркнуть, что подход, используемый при определении  $h$ , учитывает влияние призмного элемента связи и дает возможность получать значения параметров, не зависящие от эффективности связи призмы с волноводом, а также не требует измерения абсолютных значений интенсивности света. Применение широкого (в пространстве волновых векторов) светового пучка и использование метода градиент-

ного спуска при определении  $h$  позволяет избежать дополнительной юстировки оптического элемента связи в ходе перестройки падающего излучения по частоте. В результате мы можем определить коэффициент поглощения материала пленки в заданном спектральном интервале, а также ее показатель преломления  $n$  и толщину. Определение толщины пленки позволяет судить о корректности получаемых результатов путем сравнения данного значения с толщиной, измеренной независимым способом, например методом многолучевой интерферометрии или с помощью профилографа.

Измерения были выполнены для тонких пленок, изготовленных высокочастотным распылением керамической мишени из оксида цинка на подложку из кварцевого стекла при  $T = 300$  К. Толщина пленки составляла  $1.5 \mu\text{m}$ , и в ней могли распространяться пять волноводных мод. Результаты измерений спектральной зависимости  $h''(\lambda)$  для волноводной моды третьего порядка ТЕ поляризации приведены на рис. 2. Там же представлены значения  $n(\lambda)$  и  $k(\lambda)$  материала пленки, определенные волноводным методом, где  $k$  связано с коэффициентом поглощения соотношением  $\alpha = 4 \cdot \pi k / \lambda$ . Среднее значение толщины пленки  $d = 1.50 \pm 0.01 \mu\text{m}$ ; толщина пленки, измеренная с помощью профилографа, составила  $1.50 \pm 0.02 \mu\text{m}$ . Как следует из анализа приведенных кривых, спектральный коэффициент поглощения хорошо описывается зависимостью  $h''(\lambda)$ , т.е. для определения коэффициента поглощения материала пленки достаточно измерить значения  $h''(\lambda)$ .

Аналогичные измерения были проведены для пленок  $\text{SnO}_2 : \text{Sb}_2\text{O}_5$ ,  $\text{SnO}_2 : \text{Al}_2\text{O}_3$  и  $\text{SnO}_2 : \text{WO}_3$ , нанесенных на подложку из кварцевого стекла при температуре 420 К. Толщина пленки  $\text{SnO}_2 : \text{Sb}_2\text{O}_5$  составляла  $0.7 \mu\text{m}$ , и в ней распространялись две моды ТЕ поляризации. На рис. 3 представлены зависимости  $h''(\lambda)$  для пленок  $\text{SnO}_2 : \text{Sb}_2\text{O}_5$  с различной степенью легирования сурьмой, пленок  $\text{SnO}_2 : \text{Al}_2\text{O}_3$  и  $\text{SnO}_2 : \text{WO}_3$  (основная мода ТЕ поляризации). Из приведенных спектральных зависимостей следует, что изменение материала примеси, а также степени легирования материала пленки проявляется в структуре и положении полос поглощения в области прозрачности этих пленок.

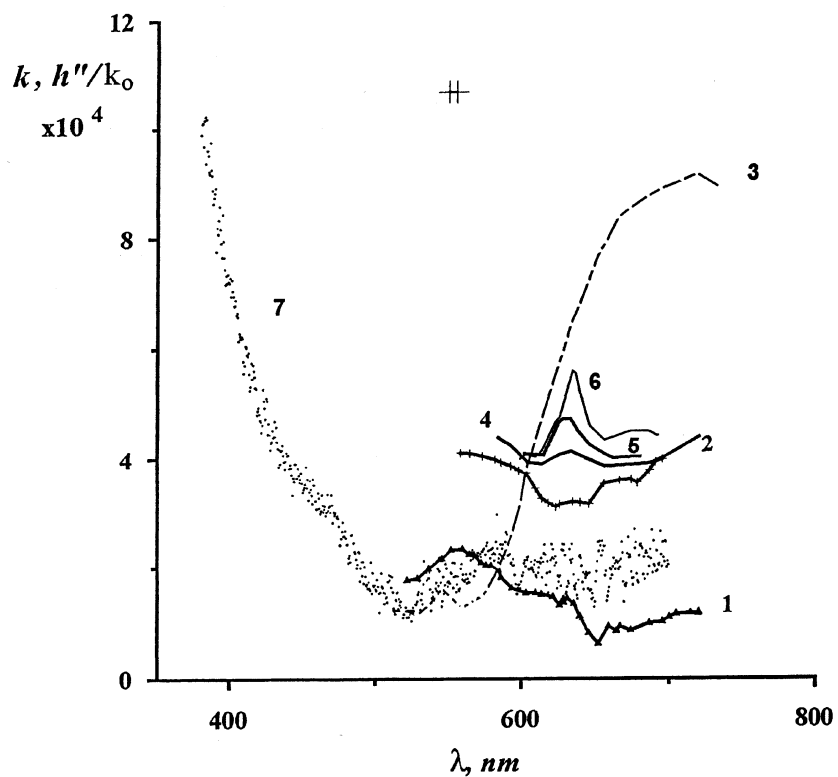
Чувствительность метода можно продемонстрировать на следующем эксперименте. Известно, что пленки двуокиси олова широко используются в качестве активного элемента газовых сенсоров [8]. Электрические свойства пленки меняются при адсорбции на ее поверхности молекул газа толщиной уже в один молекулярный слой. Естественно



**Рис. 2.** Спектральные зависимости  $h''$  (1), показателя преломления  $n(\lambda)$  (3) и коэффициента поглощения  $k(\lambda)$  (2) для пленки ZnO; 4 —  $k(\lambda)$ , измеренная методом спектроскопии пропускания.

ожидать, что и спектрально-оптические параметры пленок будут претерпевать некоторые изменения. На рис. 3 представлены спектральные зависимости  $h''(\lambda)$  для пленки  $\text{SnO}_2 : \text{Sb}_2\text{O}_5$  определенного состава в атмосфере воздуха и воздушной смеси с примесью аммиака (кривые 5 и 6 соответственно). Присутствие примеси аммиака с концентрацией около 0.01 mg/l вызывает изменение параметров пленки, что и регистрируется в ее спектре поглощения.

Суммарная относительная ошибка определения  $k(\lambda)$  с учетом систематической ошибки не превышала 0.03. Спектральный диапазон измерений был ограничен возможностями существующей приборной базы. При использовании метода волноводной спектроскопии возникают проблемы при определении значений  $k(\lambda)$  менее  $10^{-5}$  вследствие ограничений



**Рис. 3.** Зависимости  $h''(\lambda)$  для пленок  $\text{SnO}_2$  с разным типом легирующей примеси  $\text{SnO}_2 : \text{Sb}_2\text{O}_5$  (1),  $\text{SnO}_2 : \text{Al}_2\text{O}_3$  (2),  $\text{SnO}_2 : \text{WO}_3$  (3); с различным содержанием окиси сурьмы  $C_1 < C_2 < C_3$ ; кривые 2, 4, 5 — соответственно на воздухе (5) и воздушной среде с примесью аммиака (6); спектральная зависимость коэффициента поглощения для пленки  $\text{SnO}_2 : \text{WO}_3$  (7).

волноводного метода, связанных с "утечкой" энергии волноводной моды из-под призмного элемента связи [6]. Этот факт следует учитывать при проведении измерений параметров слабо поглощающих пленок, так как метод позволяет регистрировать в пленках толщиной менее  $1 \mu\text{m}$  коэффициент поглощения  $\sim 1 \text{ cm}^{-1}$  ( $k = 2 \cdot 10^{-6}$ ). Для достаточно

толстых полупроводниковых пленок ( $d \sim 1 \mu\text{m}$ ) измерения значительно упрощаются, так как в этом случае  $k \approx h''$  [9] и определение только величины  $h''$  позволяет судить о коэффициенте поглощения материала пленки.

Требование существования в исследуемой структуре направляемых мод является необязательным, когда пленка нанесена на слабо поглощающую подложку, т.е. если коэффициент поглощения материала подложки намного меньше  $k$  для пленки. В такой структуре показатель преломления подложки может быть больше показателя преломления пленки. Определение же параметров пленки возможно по измеренным постоянным распространения вытекающих мод [6].

Для сравнения были выполнены измерения значений спектрального коэффициента поглощения методом спектроскопии пропускания для исследуемых пленок. На рис. 2 (кривая 4) приведены значения  $k(\lambda)$  для пленки из оксида цинка, а на рис. 3 (кривая 7) — пленки  $\text{SnO}_2:\text{WO}_3$ . Для представленных кривых наблюдается хорошая корреляция формы спектральных зависимостей, полученных обоими методами. При этом максимальное отклонение кривых  $k(\lambda)$  и  $h''(\lambda)$  было зарегистрировано в длинноволновой области спектра для тонких пленок (рис. 3). Последнее объяснимо с точки зрения теории волноводных мод [9], так как с увеличением длины волны излучения происходит уменьшение эффективной толщины пленки, а в данном случае толщина пленки  $\text{SnO}_2:\text{WO}_3$  составляла  $0.3 \mu\text{m}$  и значение  $h''(\lambda)$  уже не равно  $k(\lambda)$ .

Приведенные результаты позволяют говорить о возможности использования метода волноводной спектроскопии для определения спектрально-оптических параметров тонких пленок в области их прозрачности.

## Список литературы

- [1] Бухитаб М.А. Измерения малых оптических потерь. Л.: Энергоатомиздат, 1988. 160 с.
- [2] Никитин П.И. // Сенсорные системы. 1998. Т. 12. № 1. С. 69–87.
- [3] Яковлев В.А., Сычугов В.А., Тищенко А.В. // Письма в ЖТФ. 1982. Т. 8. В. 11. С. 665–668.
- [4] Oliver M., Peuzin J.-C., Danel J.-S. // Appl. Phys. Lett. 1981. V. 38. N 2. P. 79–81.
- [5] Редько В.П., Романенко А.А., Сотский А.Б., Хомченко А.В. // Письма в ЖТФ. 1992. Т. 18. В. 3. С. 14–18.



- [6] Сотский А.Б., Романенко А.А., Хомченко А.В., Примак И.У. // Радиотехника и электроника. 1999. Т. 44. № 5. С. 1–9.
- [7] Mendes S.B., Li L., Burke J.J., Lee J.E., Saavedra S.S. // Appl. Opt. 1995. V. 34. N 27. P. 6180–6186.
- [8] Кисин В.В., Сысоев В.В., Ворошилов С.А. // Письма в ЖТФ. 1999. Т. 25. В. 16. С. 54–58.
- [9] Гончаренко А.М., Карпенко В.А. Основы теории оптических волноводов. М.: Наука и техника, 1983. 237 с.