

## ЭЛЛИПСОМЕТРИЧЕСКИЙ МЕТОД ИЗМЕРЕНИЯ ДИСПЕРСИИ И ТОЛЩИНЫ ПРОЗРАЧНЫХ ПЛЕНОК НА МЕТАЛЛИЧЕСКОЙ ПОДЛОЖКЕ

И. Н. Шкляревский, А. Ф. А. Эль-Шазли и Е. Идчак

Предложен новый эллипсометрический метод одновременного измерения толщины и дисперсии показателя преломления тонких прозрачных пленок, находящихся на металлической подложке. Измерены толщины и дисперсия показателей преломления тонких пленок сернистого цинка, осажденных в вакууме на сурьму, и тонких пленок криолита, осажденных на хром. Найдены факторы заполнения пленок.

### Введение

Исследование тонких диэлектрических пленок на металлической подложке представляет значительный интерес (кинетика окисления металлов, эффект Джозефсона, туннельная спектроскопия). Это могут быть искусственно нанесенные пленки на поверхность металла или пленки, полученные в результате окисления металла.

Пожалуй, основными параметрами тонких прозрачных пленок являются толщина  $l$  и показатели преломления  $n$ . Знание последних позволяет определить степень пористости пленок. Одновременное определение  $l$  и  $n$  тонких пленок в экспериментальном отношении является трудной задачей. Эллипсометрический метод Вашичека [1] пригоден для осажденных на стекло прозрачных пленок толщиной большей 100 нм. В основу выходящемся на формулах [1] методе [2] строились соответствующие номограммы; метод оказался пригодным только для осажденных на металлическую подложку прозрачных пленок толщиной большей 30 нм.

Приближенные формулы Друде и их модификации [3-6] рассчитаны на определение толщины очень тонких пленок на поверхности металла. Но при этом предполагается, что показатели преломления пленок известны. Для толщин больших 5-7 нм формулы [3-6] дают плохое приближение [7, 8]. Недавно предложен основанный на использовании точной интерференционной формулы графический метод [9], в котором показатели преломления пленки также считаются известными.

В настоящей работе предлагается новый эллипсометрический метод одновременного определения толщины и дисперсии показателей преломления тонких диэлектрических пленок на металле.

### Основные соотношения и методика измерений

Методика определения толщины и показателей преломления тонких прозрачных пленок на металлической подложке основана на измерениях для данной длины волны  $\lambda$  разности фаз  $\Delta$ , азимута восстановленной поляризации  $\psi$  и угла падения света  $\varphi$ . Оптические постоянные металлической подложки известны. Тогда [8]

$$\operatorname{tg} \psi e^{i\Delta} = \left[ \frac{r_{1p} + r_{2p} e^{-i\alpha}}{1 + r_{1p} r_{2p} e^{-i\alpha}} \right] \times \left[ \frac{1 + r_{1s} r_{2s} e^{-i\alpha}}{r_{1s} + r_{2s} e^{-i\alpha}} \right], \quad (1)$$



где  $r_{1p}$ ,  $r_{1s}$  — амплитудные коэффициенты отражения  $p$ - и  $s$ -составляющей на границе воздух—пленка, а  $r_{2p}$ ,  $r_{2s}$  — на границе пленка—металл;

$$\alpha = \frac{4\pi l}{\lambda} \sqrt{n^2 - \sin^2 \varphi}.$$

Из соотношения (1) можно получить

$$\operatorname{tg} \Delta = \frac{X_1 Y_2 - X_2 Y_1}{X_1 X_2 + Y_1 Y_2} \quad (2)$$

и

$$\operatorname{tg}^2 \psi = \frac{X_1^2 + Y_1^2}{X_2^2 + Y_2^2}. \quad (3)$$

Здесь  $X_1$ ,  $X_2$ ,  $Y_1$  и  $Y_2$  являются сложными функциями амплитудных коэффициентов отражения на обеих границах пленки и фазового угла  $\alpha$ . Они приведены в работе [9]. Формулы (2) и (3) используются для нахождения  $l$  и  $n$  тонких диэлектрических пленок.

Совершенно безразлично, каким из металлооптических методов находят разность фаз и азимут восстановленной поляризации для покрытой пленкой поверхности металла. Нами был использован метод [10], в котором с помощью компенсатора — призмы полного внутреннего отражения — отраженный эллиптически поляризованный свет превращается в линейно поляризованный с азимутом  $\psi$  и разностью  $\Delta = -180^\circ + \Delta_k$ , где  $\Delta_k$  — разность фаз, вносимая компенсатором. При таком способе компенсации разности фаз для данной длины волны  $\lambda$ , измеряемая  $\Delta$ , всегда постоянна; наличие пленки вносит зависящие от  $l$  и  $n$  изменения в  $\psi$  и  $\varphi$ .

### Методика расчетов

Пусть на поверхности металла с предварительно измеренными оптическими постоянными  $\mu$  и  $\mu_x$  находится прозрачная пленка, толщину и показатели преломления которой нужно определить. Указанным выше методом найдены  $\Delta_1$ ,  $\psi_1$  и  $\varphi_1$  для ряда длин волн видимой области спектра. (Эти измерения могут быть проведены и в других областях спектра, где пленка прозрачна).

Построим с помощью формул (2) и (3) для данного значения  $\varphi_1$  зависимости  $\Delta(l)$  и  $\operatorname{tg}^2 \psi(l)$  для разумно выбранных нескольких величин показателей преломления  $n$ . Такие зависимости рассчитываются на ЭВМ. Точки пересечения полученных таким образом семейств кривых  $\Delta(l)$  и  $\operatorname{tg}^2 \psi(l)$  измеренными величинами  $\Delta_1$  и  $\operatorname{tg}^2 \psi_1$  дают две новые зависимости  $n_\Delta(l)$  и  $n_\psi(l)$ . Уравнения (2) и (3) одновременно может удовлетворить только одна пара значений  $l$  и  $n$ . Эти значения находятся по точке пересечения кривых  $n_\Delta(l)$  и  $n_\psi(l)$ .

### Измерение толщин и показателей преломления пленок сернистого цинка

Более высокая точность измерения  $n$  и  $l$  может быть получена при более резкой зависимости  $\Delta$  (2) и  $\psi$  (3) от толщины пленки. Эта зависимость определяется как величинами  $n$ , так и главным образом значениями  $\mu$  и  $\mu_x$  металла. Из четырех исследованных металлов (серебро, золото, хром и сурьма), на которые осаждались пленки сернистого цинка, наиболее подходящим в этом смысле оказалась сурьма.

Сурьма наносилась вакуумным осаждением на стеклянные подложки. Ее оптические постоянные в видимой области спектра измерялись методом [10]. Пленки сернистого цинка различной толщины осаждались в вакууме  $\sim 10^{-5}$  мм рт. ст. со скоростью  $\sim 20$  Å/сек. Первые порции сернистого цинка осаждались на экран, который затем убирался. После измерений  $\Delta_1$ ,  $\psi_1$  и  $\varphi_1$  для ряда длин волн производился описанный выше расчет.



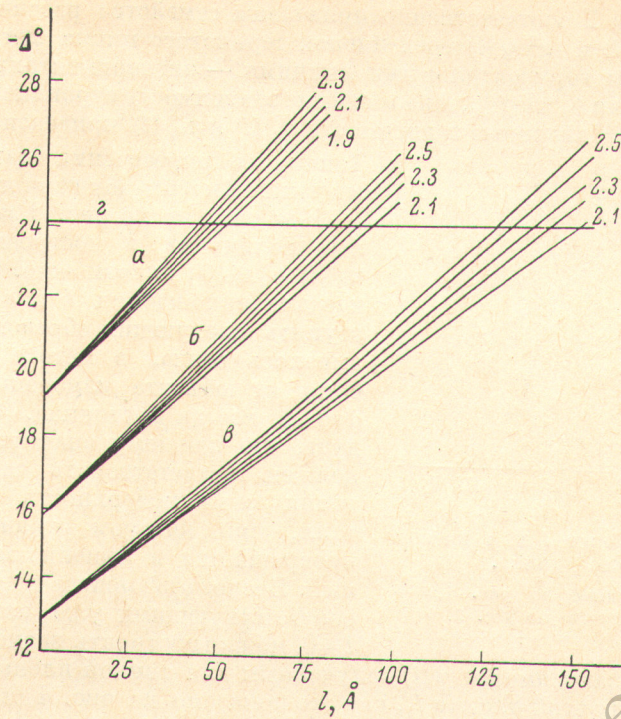


Рис. 1. Рассчитанные семейства кривых  $\Delta(l)$  для образцов *a*, *b* и *v*.

*z* — экспериментальная величина  $\Delta_1$  для пленок сернистого цинка, цифры возле кривых — значения *n*.

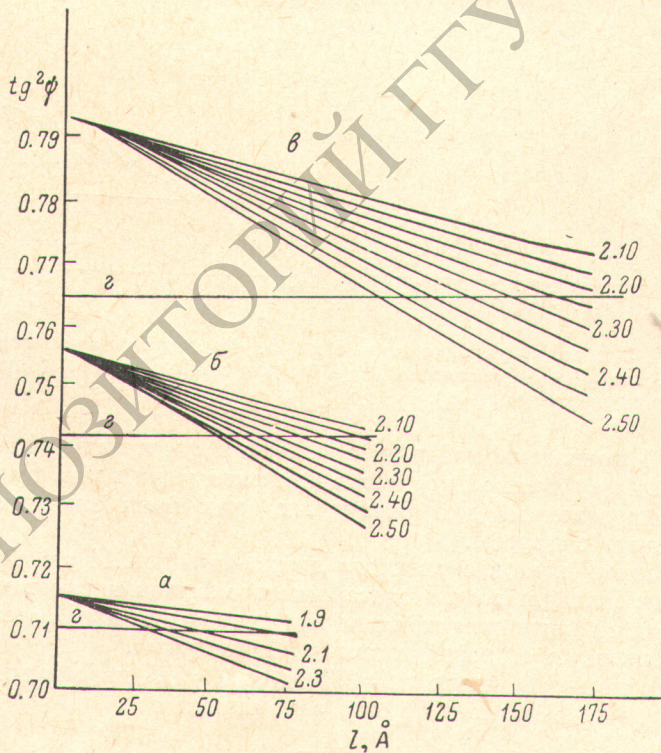


Рис. 2. Рассчитанные семейства кривых  $\text{tg}^2\phi(l)$ .

Обозначения те же, что и на рис. 1.



На рис. 1 и 2 соответственно приведены семейства рассчитанных зависимостей  $\Delta(l)$  и  $\text{tg}^2 \psi(l)$  трех пленок сернистого цинка для  $\lambda=575$  нм. Они пересечены горизонтальными линиями — экспериментальными найденными значениями  $\Delta_1$  и  $\text{tg}^2 \psi_1$ . Аналогичные зависимости строились и для других длин волн. Найденные зависимости  $n_\Delta(l)$  и  $n_\psi(l)$  приведены на рис. 3.

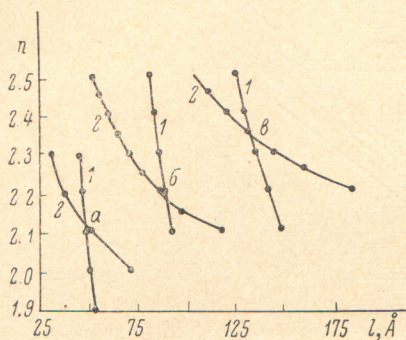


Рис. 3. Определение  $l$  и  $n$  пленок сернистого цинка.

1 —  $n_\Delta(l)$ , найденные по рис. 1, 2 —  $n_\psi(l)$ , найденные по рис. 2.

Пересечение зависимости  $\varphi(l)$  полученным для тонкой пленки значением  $\varphi_1$  дает толщину этой пленки  $l_1$ , как это показано на рис. 4 для  $\lambda=575$  нм. Далее по (2) рассчитывается зависимость  $\Delta(n)$  при данных значения  $\varphi_1$  и  $l_1$ . По пересечению этой зависимости экспериментальным значением  $\Delta_1$  (рис. 5) находится искомый показатель преломления  $n_1$ .

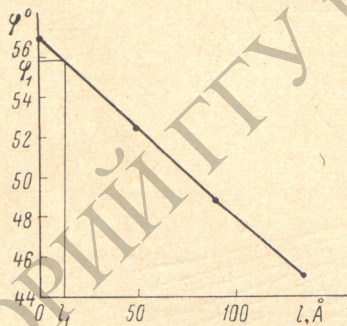


Рис. 4. Экспериментальная зависимость  $\varphi(l)$  (определение  $l_1$  по измеренному  $\varphi_1$ ).

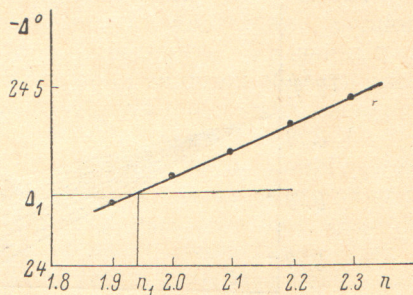


Рис. 5. Рассчитанная зависимость  $\Delta(n)$  для данных  $\varphi_1$  и  $l_1$  (определенные  $n_1$ ).

В табл. 1 приведены найденные величины  $l$  и  $n$  пяти образцов сернистого цинка на сурьмяной подложке для ряда длин волн. Как следует из таблицы, определенные для различных длин волн значения  $l$  хорошо совпадают друг с другом.

При толщине пленок сернистого цинка большей 14 нм их показатели преломления совпадают с показателями преломления слоев толщиной до 300 нм [11]. С уменьшением же толщины показатели преломления падают, что свидетельствует о возрастании их пористости.

По известному значению  $n_m=2.37$  для  $\lambda=575$  нм массивного сернистого цинка был рассчитан фактор заполнения  $q$

$$q = \frac{n^2 - 1}{n_m^2 - 1} \quad (4)$$

Для пленок толщиной 1.3, 5, 9 и 13 и 16 нм он соответственно равен 0.5, 0.7, 0.85 и 0.95.



Таблица 1

$\lambda$ , нм	$l$ , нм	$n$	$l$ , нм	$n$	$l$ , нм	$n$	$l$ , нм	$n$	$l$ , нм	$n$
450	1.4	2.12	5.2	2.16	9.0	2.32	13.0	2.47	15.8	2.43
475	1.4	2.00	5.0	2.18	8.8	2.30	13.6	2.42	—	—
500	1.3	1.90	4.8	2.13	8.6	2.26	13.4	2.40	15.7	2.40
525	1.3	1.90	4.7	2.12	8.7	2.25	13.5	2.38	16.2	2.37
550	1.3	1.85	4.8	2.12	8.8	2.23	13.5	2.36	16.5	2.35
575	1.3	1.95	4.7	2.12	9.0	2.18	13.4	2.34	16.4	2.34
600	1.2	1.80	4.8	2.10	9.0	2.16	13.1	2.34	16.5	2.34
625	1.3	1.85	4.9	2.09	9.1	2.44	13.1	2.31	16.9	2.31

## Измерение толщин и показателей преломления пленок криолита

Исследовались четыре пленки криолита, три из них осаждались на хром, а четвертая на сурьму. Соответствующие измерения и расчеты проводились аналогично описанному выше.

В отличие от рассмотренного ранее случая диэлектрических пленок с большим показателем преломления для пленок с малым показателем преломления значения  $\text{tg}^2 \psi$  (рис. 2) увеличиваются с ростом толщины пленки, а зависимости  $\text{tg}^2 \psi(l)$  в данном семействе кривых идут выше для больших показателей преломления.

Результаты измерений толщин и показателей преломления пленок криолита приведены в табл. 2. Первые три пары значений  $l$  и  $n$  в таблице получены для пленок криолита, осажденных на хром, последняя пара — для пленок криолита, осажденных на сурьму.

Таблица 2

$\lambda$ , нм	$l$ , нм	$n$	$l$ , нм	$n$	$l$ , нм	$n$	$l$ , нм	$n$
475	7.2	1.18	28.0	1.24	44.5	1.31	42.6	1.31
500	6.9	1.17	27.8	1.20	44.9	1.30	42.1	1.30
525	7.7	1.17	28.0	1.20	44.9	1.30	41.9	1.30
550	7.6	1.17	28.2	1.20	45.1	1.30	41.9	1.29
575	7.4	1.17	28.3	1.18	45.5	1.29	42.1	1.29
600	7.3	1.16	28.2	1.19	44.2	1.30	42.5	1.30
625	7.4	1.16	28.5	1.20	45.4	1.29	43.0	1.29

Как и в предыдущем случае, определенные по измерениям для различных длин волн значения  $l$  пленок криолита хорошо совпадают друг с другом. Таким образом, предложенный нами метод одновременного измерения толщин и показателей преломления тонких диэлектрических пленок на металлической подложке может быть использован как для больших, так и малых значений  $n$ .

Рассчитанные по формуле (4) факторы заполнения для пленок криолита толщиной 7.5, 28 и 45 нм соответственно равны 0.4, 0.5 и 0.8. Значение  $n_x = 1.36$  для  $\lambda = 630$  нм.

## Литература

- [1] A. Vasiček. J. Opt. Soc. Am., 37, 145, 1947.
- [2] H. Bispingk. Optik, 25, 237, 1967.
- [3] P. Drude. Wied. Ann., 36, 865, 1889.
- [4] L. Tronstad. Trans. Farad. Soc., 31, 1151, 1935.
- [5] R. J. Archer. J. Electrochem. Soc., 104, 619, 1957.
- [6] A. C. Hall. Appl. Phys., 6, 37, 1965.
- [7] D. K. Burge, H. E. Bennett. J. Opt. Soc. Am., 54, 1428, 1964.
- [8] И. Н. Шкляревский, В. П. Костюк, В. Р. Карась. Опт. и спектр., 23, 147, 1967.
- [9] И. Н. Шкляревский, Л. А. Агеев, В. П. Костюк, И. Л. Рагинский. ФТТ, 10, 3097, 1968.
- [10] И. Н. Шкляревский, В. П. Костюк, Л. Г. Лелюк, Р. Г. Яровая. Опт. и спектр., 18, 853, 1965.
- [11] И. Н. Шкляревский, А. Ф. А. Эль-Шазли, Г. В. Лысова. Опт. и спектр., 30, 1135, 1971.

Поступило в Редакцию 4 июня 1971 г.