

ОПРЕДЕЛЕНИЕ ОПТИЧЕСКИХ ПОСТОЯННЫХ ТОНКИХ ПЛЕНОК ИЗ СПЕКТРОВ ОТРАЖЕНИЯ МЕТОДОМ КРАМЕРСА—КРОНИГА

Л. И. Альперович и В. Н. Пушкарев

Предложен метод расчета оптических постоянных тонких пленок произвольной толщины, нанесенных на прозрачную либо поглощающую подложку, из спектра отражения, полученного при наклонном падении. Возможности метода иллюстрированы на примере расчета n и k пленки SiO_2 в полосе 1400 см^{-1} , нанесенной на подложку из Ge, по измеренному спектру МНПВО.

Методы отражения и в особенности нарушенного полного внутреннего отражения (НПВО и МНПВО) широко применяются при изучении оптических свойств тонких пленок [1, 2], однако количественный анализ спектров с целью получения значений оптических постоянных связан с необходимостью преодоления серьезных трудностей, особенно для инфракрасной области спектра, где эти методы наиболее часто применяются. Применение метода Крамерса—Кронига к анализу спектров отражения упрощает процедуру измерений и повышает надежность получаемых спектров $n(\nu)$ и $k(\nu)$, тем не менее в литературе до последнего времени не были описаны алгоритмы, пригодные для обработки спектров НПВО пленок. Лишь в работах [3, 4] показана возможность применения метода Крамерса—Кронига для пленок, но при этом используют формулы Друде, справедливые лишь в предельном случае $d \ll \lambda$, а случай НПВО вообще специально не рассматривается. В данной работе предлагается метод восстановления спектров n и k тонких пленок из спектров отражения, основанный на применении дисперсионных соотношений и свободный от указанных выше ограничений.

Пусть на элемент НПВО с показателем преломления n_w нанесена пленка вещества с комплексным показателем преломления \hat{n} и угол падения α удовлетворяет условию $\sin \alpha > 1/n_w$, т. е. имеет место полное внутреннее отражение на границе элемент НПВО—воздух. Толщину пленки d будем считать известной. Она может быть определена независимым методом, например эллипсометром, работающим в видимой области спектра. Комплексный амплитудный коэффициент отражения \hat{r} можно записать в виде [5]

$$\hat{r} = |\hat{r}| e^{i\theta} = \frac{\hat{r}_{12} + \hat{r}_{23} \exp(2i\beta)}{1 + \hat{r}_{12}\hat{r}_{23} \exp(2i\beta)}, \quad (1)$$

где

$$\hat{r}_{jk\perp} = \frac{\xi_j - \xi_k}{\xi_j + \xi_k}, \quad \hat{r}_{jk\parallel} = \frac{\xi_j \hat{n}_k^2 - \xi_k \hat{n}_j^2}{\xi_j \hat{n}_k^2 + \xi_k \hat{n}_j^2}, \quad \beta = 2\pi \frac{d}{\lambda} \xi_2,$$

$$\xi_j = \hat{n}_j \cos \varphi_j = (\hat{n}_j^2 - n_1^2 \sin^2 \alpha)^{1/2}, \quad n_1 = n_w, \quad \hat{n}_2 = n, \quad \hat{n}_3 = 1.$$

Анализ особых точек функции $\ln \hat{r}(\omega)$ вряд ли возможен, и это ставит под сомнение возможность использования дисперсионных соотношений между ее действительной и мнимой частью. Подобная же ситуация, хотя и в гораздо менее острой форме, возникает при анализе амплитудно-фазовых

соотношений для случая НПВО от массивного образца. В работе [6] подробно анализируется этот случай и доказывается, что обычные амплитудно-фазовые соотношения должны быть дополнены некоторыми членами, причем для параллельной поляризации в случае $1/n_w < \sin \alpha < \sqrt{\varepsilon_0/n_w}$ (ε_0 — статистическая диэлектрическая проницаемость среды) получение соотношений в виде, пригодном для использования, вообще невозможно. Тем не менее, как показано в работе [7], использование «привязочных» значений оптических постоянных позволяет обойти как трудности, связанные с появлением особых точек функции $\ln \hat{r}(\hat{\omega})$, так и трудности, обусловленные ограничением частотного интервала измерений функции $R(\nu) = |\hat{r}(\nu)|^2$ в любом реальном эксперименте. Следует отметить, что исследование особых точек в работе [6] выполнено в предположении, что n_w вещественно и постоянно в интервале частот от 0 до ∞ , но таких веществ в принципе быть не может. Вопрос о существовании особых точек функции $\ln \hat{r}(\hat{\omega})$ при внутреннем отражении от массивного образца подробно анализируется в работе [8].

Сделанные замечания позволяют распространить метод Крамерса — Кронига на случай тонких пленок способом, аналогичным примененному в работе [7] для массивных образцов. Существенное затруднение состоит в том, что в отличие от соотношений для массивных образцов выражение (1) не позволяет явно выразить \hat{n} через \hat{r} . Это затруднение, однако, не является принципиальным, так как существуют приближенные методы решения системы трансцендентных уравнений относительно n и k , к которой сведется выражение (1), если разделить в нем действительную и мнимую части.

Итак, мы исходим из дисперсионного соотношения, записанного, как и в случае массивных образцов [7], в виде

$$\Theta(\nu_0) = -\frac{\nu_0}{\pi} \int_{\nu_n}^{\nu_k} \frac{\ln R(\nu) d\nu}{\nu^2 - \nu_0^2} + C'(\nu_0) + C_2(\nu_0), \quad (2)$$

где

$$C'(\nu_0) = \frac{1}{2\pi} \left[\ln R(\nu_n) + \ln \left| \frac{\nu_0 + \nu_n}{\nu_0 - \nu_n} \right| + \ln R(\nu_k) + \ln \left| \frac{\nu_0 + \nu_k}{\nu_0 - \nu_k} \right| \right].$$

Член $C'(\nu_0)$ дает вклад в значения $\Theta(\nu_0)$ от неизмеренных участков спектра O , ν_n и ν_k , ∞ в предположении, что величины R на этих участках постоянны и равны соответственно $R(\nu_n)$ и $R(\nu_k)$, а член $C_2(\nu_0)$ учитывает как влияние отличия фактических значений R от постоянных, так и возможность появления дополнительных членов в дисперсионном соотношении между $\Theta(\nu)$ и $\ln R(\nu)$ за счет наличия особых точек функции $\ln \hat{r}(\hat{\omega})$ в плоскости комплексного переменного $\hat{\omega}$.

Так же как и в [7], для определения $C_2(\nu_0)$ можем воспользоваться линейной интерполяцией между «привязочными» точками ν'_0 и ν''_0 , в которых значения n и k пленки известны, либо считать $C_2(\nu_0)$ постоянным внутри полосы и определить его из значений n и k в одной «привязочной» точке.

Вычисление значений Θ по формуле (1) в привязочных точках не вызывает затруднений. Таким образом, по измеренному спектру $R(\nu)$ и известным значениям n и k в одной или в двух «привязочных» точках мы определяем $\Theta(\nu_0)$ в любой точке внутри полосы. Для нахождения n и k по известным R , Θ и d из системы двух уравнений (1) используем алгоритм решения системы трансцендентных уравнений, разработанный в [9]. Описание стандартной программы приведено в книге [10].

На рис. 1, 2 показаны результаты применения изложенной процедуры к модельным спектрам. Рассматривался случай пленки аморфного SiO_2 на подложке из Ge. Оптические постоянные SiO_2 были взяты из работы [11]. По формуле (1) рассчитывали спектр МНПВО для пленки заданной толщины. Тем самым моделировался спектр $R(\nu)$, который был бы получен в идеальном эксперименте, если бы оптические постоянные пленки и массивного аморфного SiO_2 были бы одинаковы. Затем по этому спектру

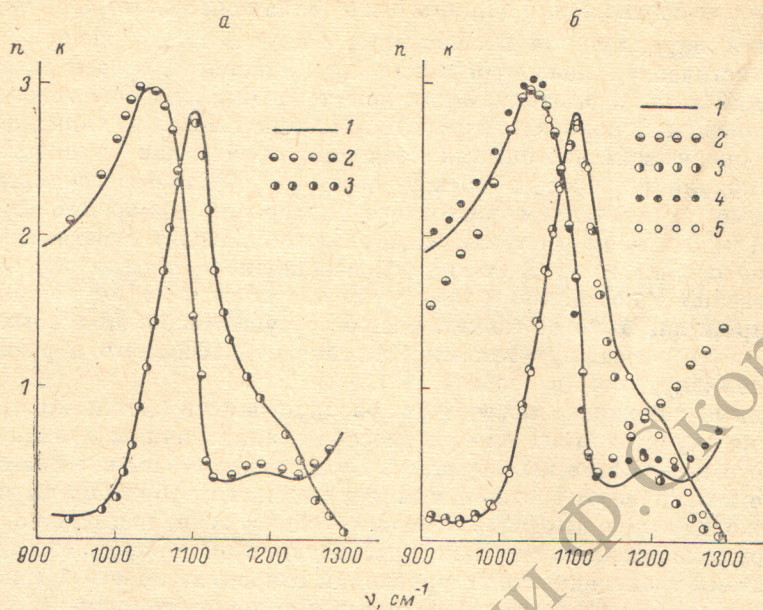


Рис. 1. Исходные и восстановленные значения оптических постоянных пленки SiO_2 ($d=32 \text{ \AA}$, $n_w=4$, $\alpha=30^\circ$, 68 отражений).

а: 1 — исходные n и k , 2, 3 — восстановленные; б: 1 — исходные n и k , 2, 3 — восстановленные при первом просчете, 4, 5 — при третьем просчете.

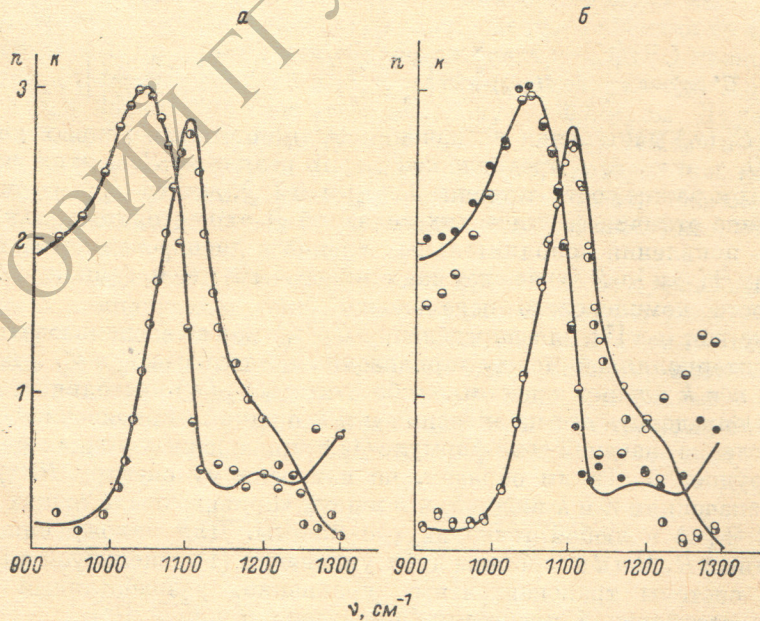


Рис. 2. То же, что и на рис. 1, но при наложении на спектр $R(\nu)$ случайного 5%-го шума.

восстанавливаем спектры n и k внутри полосы при двух различных положениях:

а) оптические постоянные пленки в двух точках вне полосы считаем известными и совпадающими с их значениями для аморфного SiO_2 ;

б) считаем известными только значения n_D и дисперсии в видимой области; по ним рассчитываем n на обоих краях полосы.

Значения k в «привязочных» точках считаем близкими к нулю. С такими данными производим расчет в первом приближении. Затем по полученному k уточняем «привязочные» значения n , используя соотношение

$$n(\nu_0) = C(\nu_0) + \frac{2}{\pi} \int_{\nu_H}^{\nu_K} \frac{k(\nu) \nu d\nu}{\nu^2 - \nu_0^2}. \quad (3)$$

Для определения $C(\nu_0)$ используем значение n в той точке вблизи центра полосы, где интеграл обращается в нуль. Его вычисляем из значений n и дисперсии в видимой области.

С уточненными значениями n в «привязочных» точках снова производим расчет n и k в полосе по описанному выше алгоритму.

Результаты применения первого варианта методики расчета для перпендикулярной поляризации приведены на рис. 1, а и рис. 2, а, а второго на рис. 1, б и рис. 2, б.

Из приведенных данных видно, что в первом варианте метода, когда «привязочные» значения оптических постоянных известны из каких-либо допол-



Рис. 3. То же, что и на рис. 1, а, но для параллельной поляризации.

1 — исходные n и k , 2, 3 — восстановленные для правильной ветви, 4, 5 — побочная ветвь.

нительных экспериментов, предлагаемая процедура восстановления n и k дает результаты, близкие к исходным, и обладает необходимой устойчивостью по отношению даже к довольно большому 5%-м случайным погрешностям измерений спектра $R(\nu)$. Случайные погрешности задавались в виде равномерного шума согласно стандартной программе выборки случайных чисел из [10]. Разброс восстановленных значений n и k больше там, где система уравнений (1) менее устойчива по отношению к искомым величинам, в нашем примере это имеет место только на высокочастотном краю полосы.

В случае применения второго варианта расчета вместо «привязочных» значений требуется доступная информация о значении n_D и дисперсии в видимой области, удлиняется процедура расчета и точность результатов получается несколько хуже, особенно при наложении больших шумов.

Для параллельной поляризации предлагаемая процедура расчета может привести к неправильному результату, как показано на рис. 3, при $\nu > 1170 \text{ см}^{-1}$. Чтобы понять причину этого, рассчитаем при заданной толщине значения R и Θ для различных n и k в том интервале их изменения, который соответствует рассматриваемому примеру. Оказывается, что в случае перпендикулярной поляризации каждой паре значений R , Θ соответствует единственная пара n , k (рис. 4, а). Для параллельной поляризации в области поиска n и k данной паре R , Θ соответствуют две пары n , k (рис. 4, б).

Следовательно, при применении стандартной программы восстановления n , k из R , Θ произошел переход поиска на неправильную ветвь решений. Поэтому необходимо предусмотреть дополнительную процедуру, по-

звolyающую вычислять и выводить на печать ЭВМ обе пары значений n, k . В нашем случае эта процедура состояла просто в вариации области поиска решений. Выбор правильной пары решений в каждом конкретном случае не представляет затруднений, поскольку неправильные значения n и k не соответствуют друг другу по соотношениям Крамера—Кронига. Хотя в приведенном примере взят случай очень тонких пленок (при большом числе

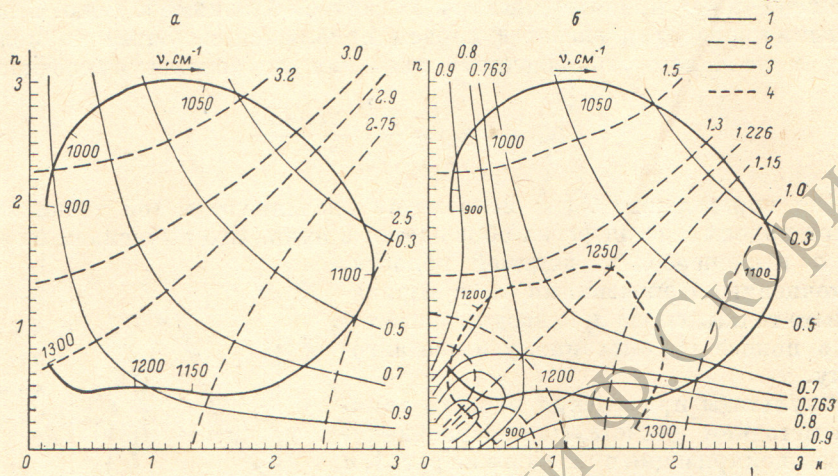


Рис. 4. Графическое отображение решений уравнений (1).

a — перпендикулярная поляризация, b — параллельная поляризация. 1 — линии $R=\text{const}$, 2 — $\theta=\text{const}$, 3 — ветвь решений \hat{n} , 4 — побочная ветвь \hat{n} .

отражений), однако в отличие от метода [3, 4] здесь используются точные формулы (1), и потому метод применим к пленкам любой толщины. Условия же эксперимента, принятые в нашем расчете, соответствуют тем реальным условиям, в которых в настоящее время проводится эксперимент по изучению пленок SiO_2 , и данные этих экспериментов предполагается обрабатывать изложенным в данной работе методом. Очевидно также, что метод пригоден не только для случая НПВО, но и для обработки любых спектров внешнего и внутреннего отражения света от пленки, находящейся на поглощающей или прозрачной подложке.

Метод должен давать хорошие результаты в случае ограниченных полос, собственных диэлектрикам. Для металлов возможности его применения существенно ограничиваются тем обстоятельством, что даже тогда, когда точные значения оптических постоянных в «привязочных» точках известны, линейная аппроксимация величины $C_2(\nu_0)$ в пределах полосы будет давать существенную погрешность. Здесь можно попытаться применить рекомендованный в [7] метод уменьшения погрешностей алгоритма. Этот вопрос нуждается в специальном исследовании.

Литература

- [1] Н. Харрик. Спектроскопия внутреннего отражения. М., 1970.
- [2] О. С. Хевенс. В сб.: Физика тонких пленок. М., 1967.
- [3] W. J. Plieth, K. Naegele. Surf. Sci., 50, 53, 1975.
- [4] K. Naegele, W. J. Plieth. Surf. Sci., 50, 64, 1975.
- [5] W. Hansen. J. Opt. Soc. Am., 58, 3, 1968.
- [6] J. S. Plaskett, P. N. Schatz. J. Chem. Phys., 38, 612, 1963.
- [7] Л. И. Альперович. Метод дисперсионных соотношений и его применение для определения оптических характеристик. Душанбе, Ирфон, 1973.
- [8] Л. И. Альперович. Определение оптических постоянных веществ в широкой спектральной области. Душанбе, Дониш, 1979.
- [9] Правила и инструкции по программированию для ЭВМ «Минск-22» на языке «АКИ-400», под ред. Г. Л. Голованевского, Л., 1969.
- [10] Б. П. Демидович, И. А. Марон. Основы вычислительной математики, 450. ФМ, М., 1963.
- [11] С. И. Попова, Т. С. Толстых, В. Г. Воробьев. Опт. и спектр., 33, 81, 1972.

Поступило в Редакцию 23 декабря 1978 г.