

# ЭЛЛИПСОМЕТРИЯ ГРАДИЕНТНЫХ ДИЭЛЕКТРИЧЕСКИХ НАНОПЛЕНОК

В.В. Азарова<sup>1,2</sup>, О.Д.Вольпян<sup>2</sup>, В.В.Фокин<sup>1,2</sup>

1-МИЭМ (ТУ); 2-ФГУП НИИ «Полюс» им. М.Ф.Стельмаха

[azarovav@hotbox.ru](mailto:azarovav@hotbox.ru)

**Abstract.** Analyzed the ellipsometrical measurement method for using it in technology process of thin dielectric films production. Shown, that this method is very useful for study of gradient films parameters. It can be measured with high precision dispersion functions  $n(\lambda)$ ,  $k(\lambda)$  and thickness  $d$  with help of spectral many angles ellipsometrical method. Compared the parameters of three measured gradient thin films from  $Nb_2O_5$  and  $SiO_2$ .

## 1. Введение.

Оптические, в частности, эллипсометрические методы исследования тонкопленочных объектов являются наиболее информативными, т.к. именно они определяют основные (оптические) характеристики пленок. Задачи изготовления многослойных интерференционных диэлектрических покрытий лазерных зеркал с максимальным коэффициентом отражения, а также конструирования узкополосных оптических фильтров и просветляющих покрытий оптических деталей в заданном спектральном диапазоне требуют точного определения параметров тонких пленок. В частности, показателей преломления материала пленок и его дисперсионной зависимости –  $n(\lambda)$ , геометрической толщины пленок- $d$ , а часто и коэффициента поглощения в зависимости от длины волны -  $k(\lambda)$ . Более того, параметры  $n(\lambda)$  и  $k(\lambda)$  можно рассматривать в качестве характеристики химического состава материала пленки и степени его однородности. При анализе градиентных профилей пленок по этим параметрам можно характеризовать степень однородности исследуемых покрытий.

В работах [1,2] проведено рассмотрение модели расчета неоднородного изменения показателя преломления при анализе толщин пленок. В настоящее время большой интерес наблюдается к разработке и нанесению специально сконструированных градиентных тонких пленок и многослойных покрытий для создания узкополосных фильтров для оптических линий связи, прецизионных лазерных зеркал, а также оптических покрытий для солнечных батарей. Такие покрытия разрабатываются в НИИ «Полюс» и НПК «Фотрон-Авто». Для получения прецизионных тонких пленок, с большой точностью удовлетворяющих заданной конструкции, используются методы ионно-лучевого напыления [3] и реактивного магнетронного распыления [4].

## 2. Эллипсометрический метод измерения параметров тонких пленок

Измерения и анализ изменений поляризационного состояния электромагнитного излучения оптического диапазона при отражении от исследуемого объекта, называемые отражательной эллипсометрией, определяют параметры поверхностей и тонких пленок, нанесенных на них. Анализ, проводимый при нескольких углах падения и для нескольких длин

волн, так называемый метод многоугловой спектральной эллипсометрии позволяет одновременно определять указанные выше параметры -  $n(\lambda)$ ,  $d$  и  $k(\lambda)$  – с достаточно высокой точностью.

Основное уравнение эллипсометрии, связывающее между собой эллипсометрические параметры дельта ( $\Delta$ ) и пси ( $\Psi$ ) и комплексные значения коэффициентов отражения по амплитуде  $R_p$  и  $R_s$  для р- и s-поляризованного света записывается в виде:

$$\rho = \frac{R_p}{R_s} = \tan(\Psi)e^{i\Delta} . \quad (1)$$

По измеренным величинам  $\Delta$  и  $\Psi$  при решении обратной задачи эллипсометрии на основе выбранной модели определяются оптические параметры поверхности образца. При однопленочной модели поверхности, показанной на рис.1, суммарный коэффициент отражения для данной поляризации  $R$ , согласно формулам Френеля с учетом многократных отражений, запишется в виде [3]:

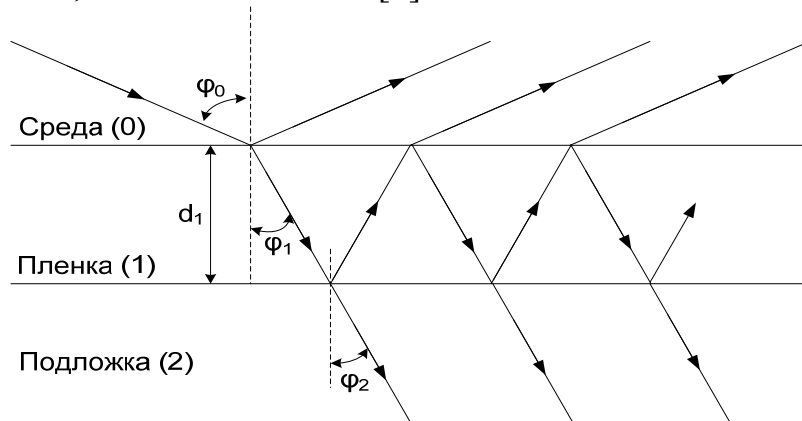


Рис.1. Многократные отражения в системе среда (0) – пленка (1) – подложка (2).

$$R = \frac{R_{01} + R_{12} e^{i2\beta}}{1 + R_{01} R_{12} e^{i2\beta}} . \quad (2)$$

где –  $R_{01j}$  и  $R_{12j}$  - коэффициенты отражения для соответствующих границ раздела и рассматриваемой (s или p поляризации),  $\beta$  – фазовая толщина пленки, которая выражается следующим образом:

$$\beta = 2\pi n_1 \frac{d}{\lambda} \cos \varphi_1 = 2\pi \frac{d}{\lambda} \sqrt{n_1^2 - n_0^2 \sin^2 \varphi_0} . \quad (3)$$

Уравнение (2) справедливо для р- или s-поляризованных компонент, при условии, что используются соответствующие р- или s-поляризованные коэффициенты отражения Френеля для границ раздела. Отсюда, выражая коэффициенты отражения для р- и s-компонент из уравнения (2), и подставляя их в уравнение (1), получаем основное уравнение эллипсометрии для случая одной пленки на подложке:

$$\rho = \frac{R_{01p} + R_{12p} e^{i2\beta}}{1 + R_{01p} R_{12p} e^{i2\beta}} \times \frac{1 + R_{01s} R_{12s} e^{i2\beta}}{R_{01s} + R_{12s} e^{i2\beta}} = \tan(\Psi)e^{i\Delta} . \quad (4)$$

При увеличении количества слоев картина многократного отражения резко усложняется и для описания отдельных слоев и подложки

используются «характеристические матрицы». Эти матрицы связывают компоненты поля (электрического и/или магнитного) на вершине пленки с компонентами поля на дне. Затем результаты, действительные для многослойных структур, получаются перемножением соответствующих матриц вместе по порядку через стопу. Такой формализм, основанный на  $2 \times 2$  матрицах, не требует огромного объема вычислений и хорошо пригоден для оценки градиентных пленок и других структур с большим числом слоев.

### 3. Способ получения градиентных пленок

Градиентными называются пленки, у которых состав и показатель преломления изменяются по толщине либо линейно, либо по заданному закону. Исследуемые в работе градиентные пленки были изготовлены следующим образом. В вакуумной камере-3 (рис. 2) были монтированы два магнетрона: 1 и 2 с мишенями из двуокиси кремния и ниобия, которые при получении покрытия работали одновременно в кислородной среде.

Подложка для напыления-4 во время нанесения покрытия двигалась по заданному закону между магнетронами.

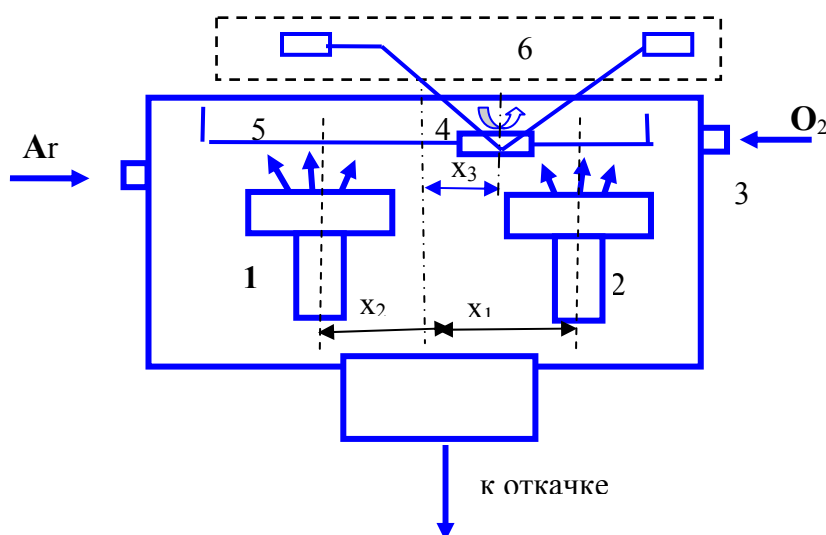


Рис. 2. Схема устройства реактивного магнетронного распыления для получения наногradientных пленок.

Состав образуемой пленки, то есть количество вещества  $M_1$ , осажденного на подложку с мишени 1 и количество вещества с мишени 2 -  $M_2$ , определялся законом движения подложки относительно магнетронов.

$$M = M_1 + M_2 = M\{x_1, x_2, x_3\} \quad (5)$$

Этим же законом будет определяться и показатель преломления пленки в направлении перпендикулярном поверхности подложки, поскольку показатель преломления пленки непосредственно определяется ее материалом

$$n = N\{M_1, M_2\}. \quad (6)$$

Для получения градиентных пленок с заданным профилем необходимо прецизионное движение образца, которое обеспечивается устройством движения 5. Для управления движением образца используется информация об оптических характеристиках напыляемой пленки, получаемая с помощью устройства 6. Разработанный метод был реализован на установке «ЭЛИМАГ».

#### 4. Эллипсометрические измерения тонких пленок.

В данной работе приводятся сравнительные результаты измерений 3-х образцов наногradientных тонких пленок, изготовленных по разным конструкциям. Градиент оптических констант пленок достигался смешением двух материалов  $\text{SiO}_2$  и  $\text{Nb}_2\text{O}_5$ . Измерения проводились на спектроскопическом эллипсометре с вращающимся компенсатором компании J.A. Woollam M-2000 с возможностью сбора эллипсометрических данных на разных углах падения. Экспериментально измерялись зависимости  $\Delta(\lambda)$  и  $\Psi(\lambda)$  при трех углах падения 60, 65 и 70 градусов. Спектральный диапазон измерения находился от 380 нм до 1000 нм. На рис.3(а,б) приведены экспериментальные зависимости эллипсометрических параметров  $\Delta$  (рис.3а) и  $\Psi$  (рис.3б) для одного из исследуемых образцов пленки (№3).

Градиент оптических свойств пленки вдоль направления нормали пленки (от вершины ко дну через пленку) обычно описывается разбиением пленки на некоторое число гораздо более тонких слоев, в предположении однородности каждого из них. Свойства отдельных слоев рассчитываются из заданного градиентного профиля пленки.

Существует некоторое количество моделей в литературе для расчета эффективных оптических констант смеси двух или трех материалов, известные как приближения эффективной среды (effective medium approximations ЕМА). Нами было выбрано линейное ЕМА – проведение линейной интерполяции между составляющими оптическими константами:

$$\tilde{\epsilon} = f_A \epsilon_A + f_B \epsilon_B, \quad (7)$$

где  $\tilde{\epsilon}$  – эффективная комплексная диэлектрическая функция смеси,  $f_A$  и  $f_B$  – объемные доли (распределенные в пределах от нуля до единицы) каждого составного материала, а  $\epsilon_A$  и  $\epsilon_B$  – комплексные диэлектрические функции составляющих материалов. Объемные доли должны в сумме равняться единице. Линейная интерполяция ЕМА (1.6) часто используется для градиентных слоев.

Для определения дисперсионной зависимости показателя преломления  $n(\lambda)$  использовалось дисперсионное уравнение Коши:

$$n(\lambda) = A + \frac{B}{\lambda^2} + \frac{C}{\lambda^4}, \quad (8)$$

где параметр А, В и С – коэффициенты, для однозначного определения которых необходимо проводить измерения при 3-х углах падения.

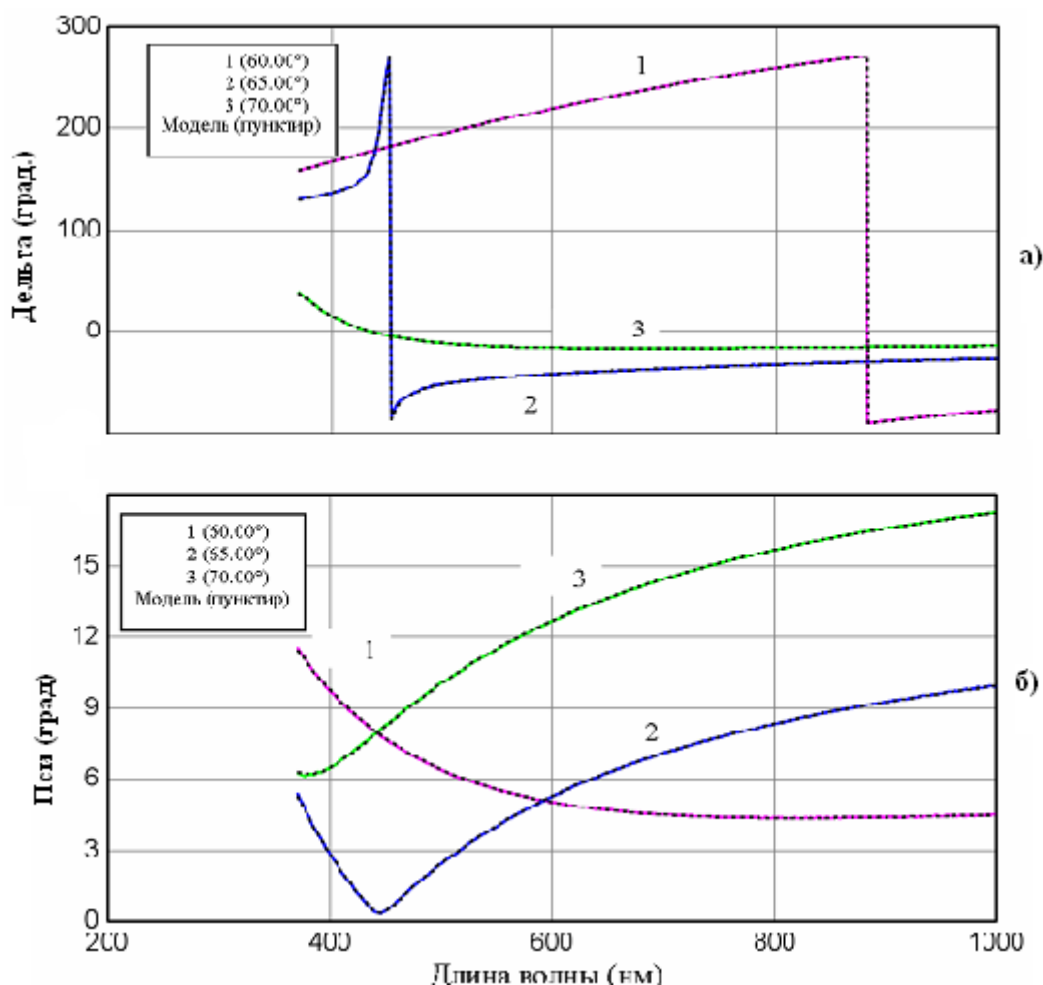


Рис. 3. Экспериментально измеренные зависимости  $\Delta(\lambda)$  -а) и  $\Psi(\lambda)$  –б) при трех углах падения (60, 65 и 70 градусов) для образца №3. (Пунктиром отмечены зависимости, рассчитанные из выбранной модели.)

Для определения зависимости коэффициента поглощения (экспоненциального хвоста поглощения)  $k(\lambda)$  использовалось уравнение:

$$k(\lambda) = P \cdot \exp(-Q \cdot \lambda), \quad (9)$$

где  $P$  – амплитуда,  $Q$  – коэффициент в степени экспоненты. Оба параметра подбираются при расчете таким образом, чтобы минимизировать функцию ошибки.

Для определения оптических параметров наногradientных пленок была выбрана модель прозрачной пленки на прозрачной подложке. Для определения оптических параметров подложки она предварительно обмерялась. Таким образом решалась задача с известными оптическими константами подложки. При моделировании исследуемых образцов пленка разбивалась на десять подслоев, при этом каждый отдельный слой в своих пределах считался однородным.

При расчете теоретических зависимостей  $\Delta(\lambda)$  и  $\Psi(\lambda)$  (на основе выбранной модели) варьируются переменные параметры ( $n$ ,  $k$  и  $d$ ) таким образом, чтобы эллипсометрические данные, рассчитанные из модели, приближались к экспериментальным данным так близко, как это возможно. Оценка максимального правдоподобия (функции ошибки) должна быть

положительной и должна стремиться к нулю (или по меньшей мере к абсолютному минимуму), когда рассчитанные данные соответствуют точно экспериментальным данным. Использовалась следующая оценка максимального правдоподобия, среднеквадратичная ошибка (mean-squared error MSE):

$$MSE = \frac{1}{2N-M} \sum_{i=1}^N \left[ \left( \frac{\Psi_i^{mod} - \Psi_i^{exp}}{\sigma_{\Psi_i}} \right)^2 + \left( \frac{\Delta_i^{mod} - \Delta_i^{exp}}{\sigma_{\Delta_i}} \right)^2 \right], \quad (10)$$

где N – число пар ( $\Psi, \Delta$ ), M – число переменных параметров в модели,  $\Psi_i^{mod}$ ,  $\Delta_i^{mod}$  – данные рассчитанные из модели,  $\Psi_i^{exp}$ ,  $\Delta_i^{exp}$  – экспериментальные данные, а  $\sigma$  – стандартное отклонение по точкам экспериментальных данных.

## 5. Результаты измерений градиентных пленок

Измерения толщин, показателей преломления и поглощения эффективных сред и их дисперсионных зависимостей проведены на 3-х образцах градиентных пленок. Из рис.4 видно, что пленка образца №1 имеет линейное изменение состава материала, причем процентное соотношение SiO<sub>2</sub> в ней линейно изменяется от приблизительно 50% в нижней части пленки до 30% в верхней ее части. Это достаточно хорошо коррелирует с дисперсионной зависимостью показателя преломления в верхней и нижней части градиентной пленки образца №1, показанной на рис.5.

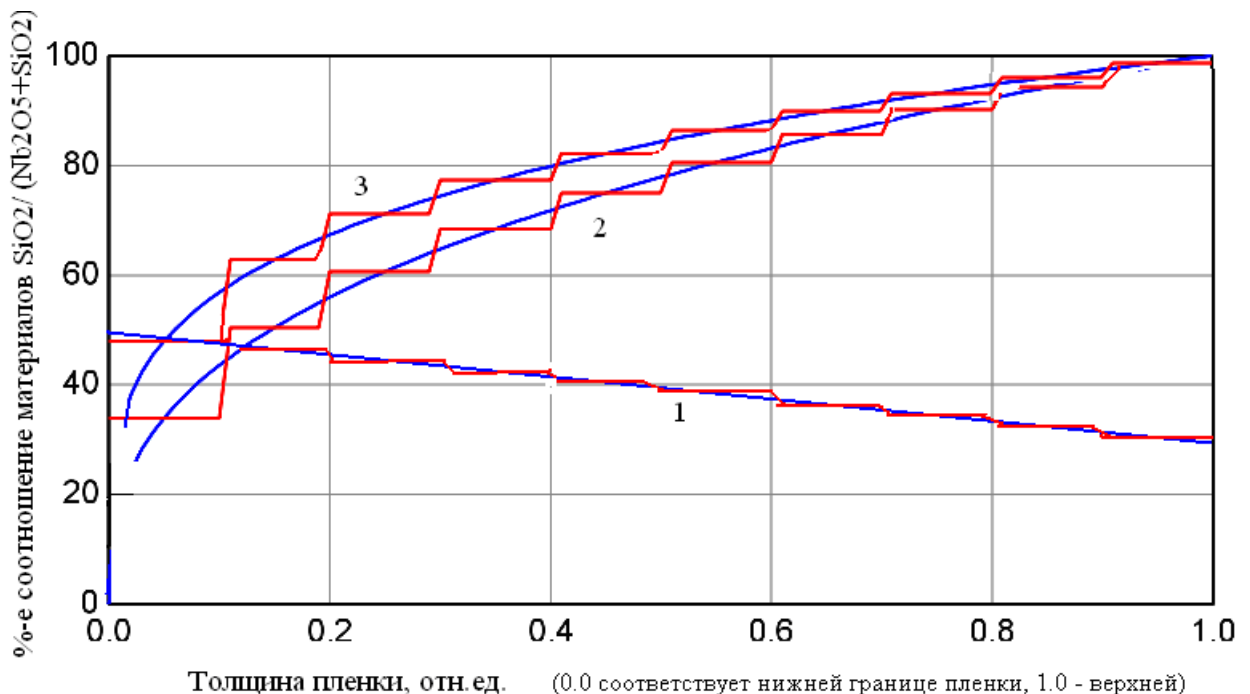


Рис. 4. Процентные соотношения материалов, изменяющиеся по толщине градиентных пленок на образцах №№ 1,2,3.

Пленки 2 и 3 нанесены при неравномерном перемещении образцов между мишенями (рис.2, ф-ла 5), причем форма неравномерности соотношения материалов пленок соответствует состояниям позиционирования и нелинейности закона перемещения образцов. Из градиентных зависимостей 2 и 3 рис.4 следует, что верхние части пленок состоят практически на 100% из материала  $\text{SiO}_2$ . Это хорошо подтверждается кривыми №2 и №3 (верхний подслой) на рис.5. Для длины волны 632 нм их показатели преломления равны  $1,51 \pm 0,01$  (см. Таблицу).

Нижние слои пленок на образцах №2 и №3 содержат значительное количество материала  $\text{Nb}_2\text{O}_5$ . А именно, пленка №2 ~ 65% и ~50% - пленка №3. Это различие состава материала нижних слоев образцов 2 и 3 заметно сказывается на величинах показателей преломления, изображенных кривыми №2 и №3 (нижний слой) на рис.5. Для длины волны 632 нм их показатели преломления равны 2,34 и 2,2, соответственно (см. Таблицу).

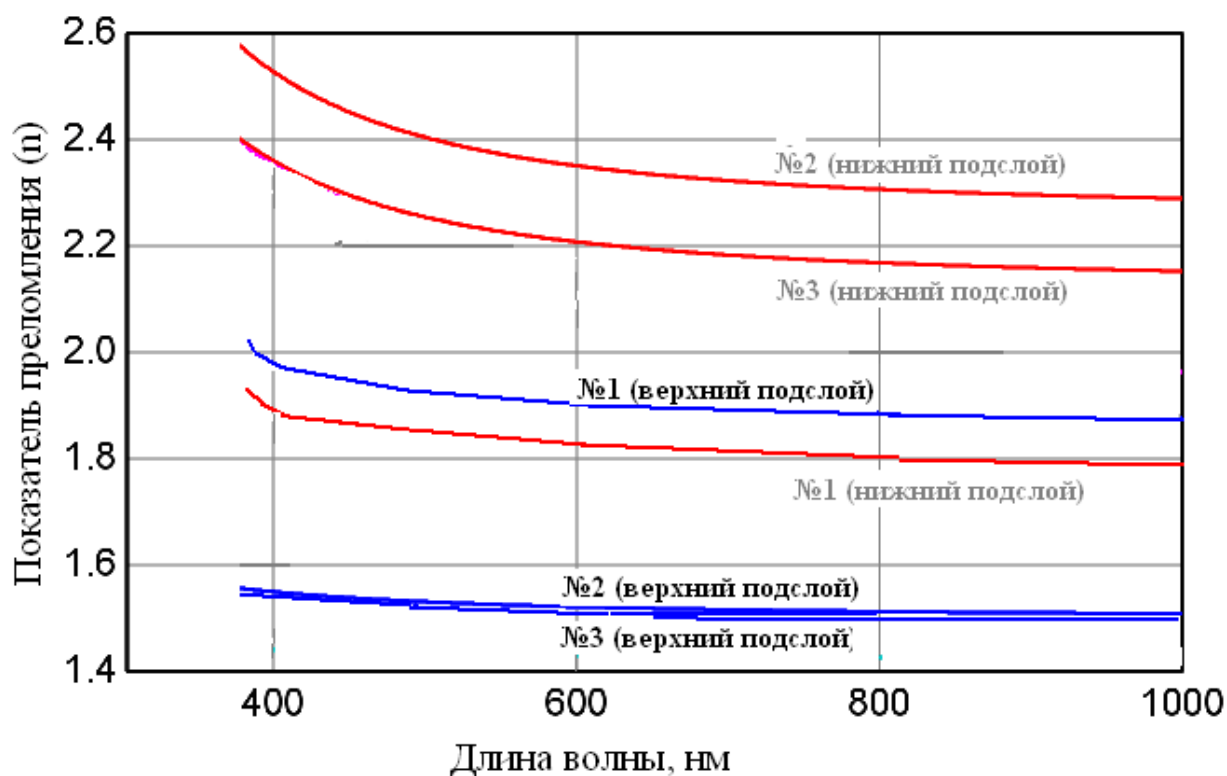


Рис.5. Дисперсионные зависимости показателей преломления верхних и нижних подслоев градиентных пленок образцов №1, №2 и №3 в диапазоне длин волн 380 – 1000 нм.

Таблица

Образец	Толщина d, нм	Длина волны, нм	n - верхний	n- нижний	k – верхний	k - нижний
№1	$57,2 \pm 0,3$	632,7	1,89	1,81	0,0033	0,0026
№2	$49,2 \pm 0,5$	«	1,52	2,34	0,0012	0,0282
№3	$48,0 \pm 0,3$	«	1,51	2,2	0,0003	0,0075

Помимо показателей преломления и толщин пленок эллипсометрические измерения позволяют оценить коэффициенты поглощения пленок их градиентный характер и дисперсионные зависимости (см. ф-лу 9). Из рис.6 видно, что минимальный коэффициент поглощения имеет материал  $\text{SiO}_2$  (см.кривая №3 верхний подслой). Для длины волны 632 нм показатель поглощения не превышает  $3 \cdot 10^{-4}$  (см. Таблицу). Добавление 50% материала  $\text{Nb}_2\text{O}_5$  приводит к увеличению параметра  $k$  до величины  $75 \cdot 10^{-4}$ . Увеличение параметра  $k$  в пленке образца №2 можно объяснить нарушением режима подачи кислорода при ее напылении.

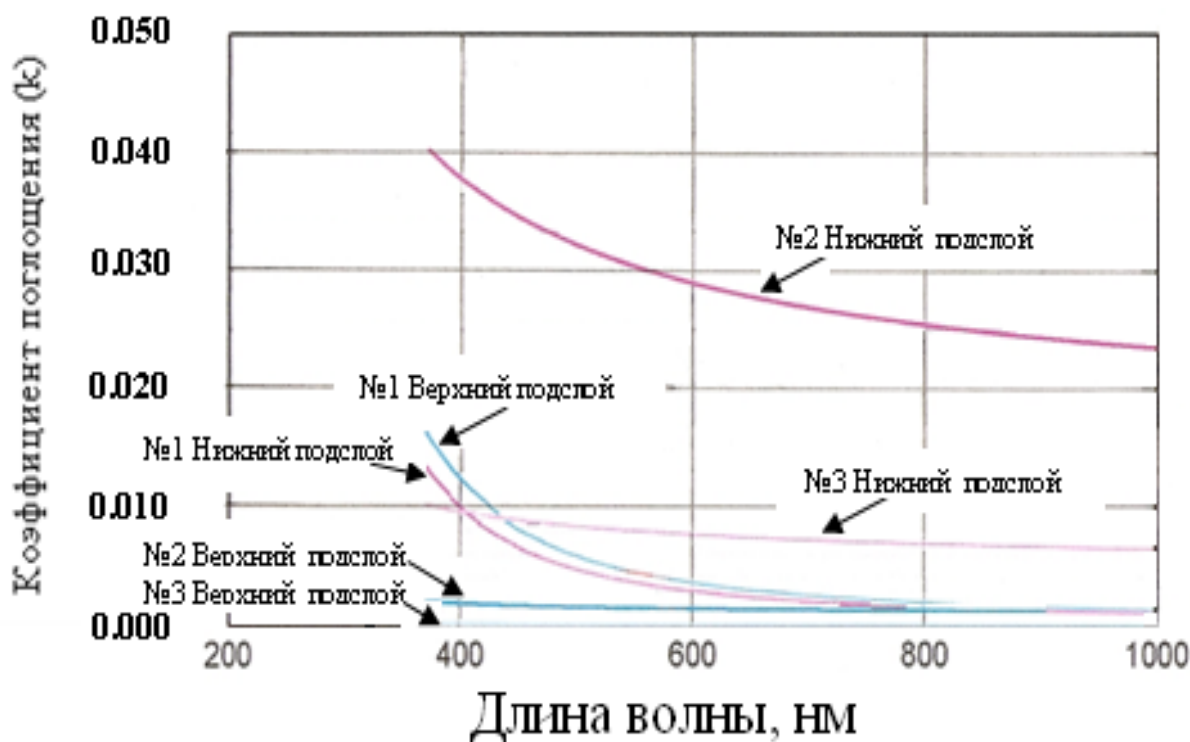


Рис.6. Дисперсионные зависимости коэффициентов поглощения верхних и нижних подслоев градиентных пленок образцов №1, №2 и №3 в диапазоне длин волн 380 – 1000 нм.

### Выводы

Метод спектральной многоугловой эллипсометрии позволяет с достаточно высокой точностью проводить измерения толщин, показателей преломления, коэффициентов поглощения и их дисперсионных зависимостей для сложных градиентных пленок. Более того, использование этого метрологического метода позволяет корректировать технологический процесс создания градиентных пленок с заданным профилем. Измерение коэффициентов поглощения нанесенных пленок позволяет отработать технологический процесс напыления в части оптимизации подачи кислорода.



1. Крылова Т.Н., Бохонская И.Ф., Карапетян Г.А. Измерение прозрачных пленок на поверхности стекла эллипсометрическим и спектрофотометрическим методами// Опт. и спектр. – 1980, т.49,вып.4.,стр.802-808.
2. Толмачев В.А. Адсорбционно-эллипсометрический метод исследования оптического профиля, толщины и пористости тонких пленок// Опт.журнал -1999, т.66,№7, стр.20-34.
3. G. Kolodnyi, Yu. Golyaev, V. Azarova, M. Rasyov, N. Tikhmenev, Ion beam optical coatings for visible and near IR lasers. Proc. SPIE, v.4350, 120÷125, 2000.
4. Вольпян О. Д., Кузьмичев А. И., Обод Ю. А, Яковлев П. П. Опыт нанесения оптических и лазерных покрытий магнетронным методом. Проблема градиентных покрытий // Материалы III Международной научно-технической конференции «Вакуумная техника, материалы и технология», Москва, 2008, с. 42-43.
5. Азам Р., Башара Н. Эллипсометрия и поляризованный свет.– М.: Мир,1981.-582 с.