

П.С. Кособуцький¹, А. Моргуліс², О.П. Кушнір³

Закономірності прояву псевдобрюстерівської кутової умови в еліпсометричних спектрах одноплівкових структур сталої товщини

¹Національний університет «Львівська політехніка», вул. С.Бандери 12, Львів, 79646 Україна
E-mail: petkosob@polynet.lviv.ua, тел: +(032)238-96-34

²Міський університет м. Нью-Йорк, 199 Chambers street, New York, NY 10007, США
E-mail: askmath@yahoo.com

³Львівський державний аграрний університет, вул. В.Великого 1, Дубляни, Львівська обл., 80381, Україна
E-mail: o-p-ku@yandex.ru

Робота присвячена дослідженню закономірностей еліпсометричних кривих сталої товщини одноплівкової структури. Показано, що характерні для поляризаційних кутів Ψ і Δ зміни зумовлені проявом псевдобрюстерівської кутової умови.

Стаття поступила до редакції 15.07.2007; прийнята до друку 15.12.2007.

Вступ

Відомі різні методи контролю параметрів плівкових структур, в тому числі на поверхні твердих тіл. Широкого застосування знайшли неруйнівні методи, до яких належить метод еліпсометрії, що побудовані на закономірностях формування амплітудно-фазових закономірностей спектрів багатопроменевої інтерференції.

Базовим принципом еліпсометрії є закономірність кутового відбиття світла одинарною межею розділу, що в p -поляризації під кутом Брюстера α_B енергетичний коефіцієнт прямує до нуля $R_p \rightarrow 0$, а в s -компоненті ця залежність монотонна. Тому, основні рівняння еліпсометрії сформульовані як

$$\tilde{\rho} = \frac{\tilde{r}_p}{\tilde{r}_s} = \operatorname{tg} \Psi \cdot \exp(i \Delta) \quad \text{і} \quad \tilde{\tau} = \frac{\tilde{t}_p}{\tilde{t}_s} = \operatorname{tg} \Phi \cdot \exp(i \Lambda), \quad (1)$$

де Ψ, Φ і $\Delta = (\phi_p - \phi_s)$, $\Lambda = (\varphi_p - \varphi_s)$ – параметри еліпса поляризації або так звані поляризаційні кути. Кути падіння α і заломлення β та показники заломлень контактуючих середовищ $n_{1,2}$ пов'язані між собою законом заломлення $n_1 \sin \alpha = n_2 \sin \beta$. Для одинарних меж поділів 12 і 23 амплітудні коефіцієнти відбиття $\tilde{r}_{p,s}$ і пропускання $\tilde{t}_{p,s}$ пов'язані між собою співвідношенням

$$1 + \tilde{r}_{p,s} = \sqrt{\frac{n_2 \cos \beta}{n_1 \cos \alpha}} \cdot \tilde{t}_{p,s},$$

$$\text{де } \tilde{r}_s = -\frac{\sin(\alpha - \tilde{\beta})}{\sin(\alpha + \tilde{\beta})} = \sigma_s \exp(i\phi_s),$$

$$\text{а } \tilde{r}_p = \frac{\operatorname{tg}(\alpha - \tilde{\beta})}{\operatorname{tg}(\alpha + \tilde{\beta})} = \sigma_p \exp(i\phi_p). \quad \text{В принципі, підхід (1)}$$

перенесений і для плівкових структур [1-7] і на цій основі обґрунтовані основні засади еліпсометричного моніторингу їх параметрів [8].

Однак, на відміну від одинарної межі, багатопроменева інтерференція світла в плівці спричиняє немонотонний характер кутових залежностей контуру відбиття в обох поляризаціях [9-12], що зумовлені фазовою компенсацією на протилежних гранях плівки [13,14] та проявом псевдобрюстерівської кутової умови [15].

Метою даної роботи було дослідити закономірність прояву псевдобрюстерівської кутової умови на формування еліпсометричних кривих сталої товщини $[\Delta, \Lambda] = f(\Psi, \Phi)$.

I. Обговорення одержаних результатів та основні висновки

Як було встановлено в роботі [11], для бінарної

межі поділу існує кут α_{pB} , під яким при одночасному виконанні псевдобрюстерівської кутової умови

$$\sigma_{p12} = \sigma_{p23} \Omega \quad (2)$$

і фазової компенсації [8,9]

$$\phi_{p12} - (\phi_{p23} - \text{Re } \tilde{\delta}) = \pi, 3\pi, 5\pi, \dots, (2m+1)\pi, \quad (3)$$

світло плівкою не відбивається $R_p = 0$, і поляризаційний кут приймає значення

$$\Psi_p \rightarrow 0, 2\pi, 4\pi, \dots, 2m\pi, \quad (4)$$

де $\Omega = \exp(\text{Im } \tilde{\delta})$, $\tilde{\delta} = \frac{4\pi}{\lambda} d \tilde{n}_2$. Алгоритм

застосування умов (2) і (3) приведений в додатку.

Псевдобрюстерівський кут – це для бінарної плоскопаралельної межі аналог Брюстерівського для одинарної [11], що не заперечує точці зору [8]. Треба зазначити, що в цей термін в літературі вкладався й інший зміст. Так, автори [1,2], під псевдобрюстерівським кутом розглядали той, під яким за наявності поглинання в мінімумі енергетичний коефіцієнт відбиття $R_p|_{\alpha_B} \neq 0$.

Насправді, за наявності поглинання коректніше розглядати так званий Брюстерівський [16] чи псевдобрюстерівський квазікут.

Однак, існує принципова різниця між Брюстерівською і псевдобрюстерівською умовами (3,4). Остання для прозорої плівки дозволена в обох поляризаціях і під кутом α_{sB} в мінімумі контуру відбивання $R_s = 0$, тому поляризаційний кут приймає значення

$$\Psi_s \rightarrow \frac{\pi}{2}, \frac{3\pi}{2}, \frac{5\pi}{2}, \dots, (2m+1)\frac{\pi}{2}. \quad (5)$$

Крім цього, для бінарної межі характерний додатковий кут падіння α_d , під яким виконується рівність $R_s = R_p$ і поляризаційний кут дорівнює

$$\Psi_d \rightarrow \frac{\pi}{4}, \frac{3\pi}{4}, \frac{5\pi}{4}, \dots, (2m+1)\frac{\pi}{4}. \quad (6)$$

Сформульовані висновки виражають загальні закономірності формування еліпсометричної кривої сталої товщини з врахуванням багатопроменевої інтерференції. Подальший їх аналіз проведемо роздільно для несиметричних ($n_1 \neq n_3$) і симетричних ($n_1 = n_3$) структур.

Несиметричні структури типу ($n_1 = 1$). До найбільш загальних закономірностей формування еліпсометричної залежності $\Delta = f(\Psi)$ можна віднести.

1. Якщо плівка оптично менш густа, ніж підкладка $n_2 < n_3$, то умова (4) виконується в обох поляризаціях і, згідно (2), еліпсометрична крива $\Delta = f(\Psi)$ формується в інтервалі значень поляризаційного кута $0 < \Psi < \frac{\pi}{2}$. Причому, діапазон

$0 < \Psi \leq \frac{\pi}{4}$ відповідає тим товщинам плівки, для яких

мінімум контуру відбивання формується в p -компоненті поляризації, тоді як діапазону $\frac{\pi}{2} \leq \Psi \leq \pi$ відповідає мінімум контуру відбивання в s -компоненті (рис. 1,а). В граничному випадку $d \rightarrow 0$ встановлені закономірності узгоджуються із характером формування еліпсометричної кривої для одинарної межі (товстий контур на рис.1,а).

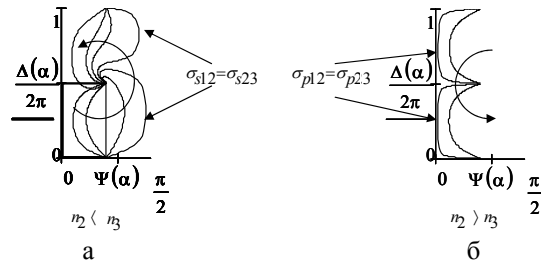


Рис. 1. Ілюстрація прояву псевдобрюстерівської кутової умови $\sigma_{s,p12} = \sigma_{s,p23}$ в еліпсометричних залежностях сталої товщини $\Delta = f(\Psi)$. Стрілки вказують напрям зростання товщини шару. Параметри розрахунку: $n_1 = 1$, $n_2 = 1.25$, $n_3 = 3.25$ (а) і $n_2 = 3.25$, $n_3 = 1.25$ (б). $d, \text{нм}$: 250, 600, 1040, 1250, 1400, 1500, 1750, 2000, 2500.

2. Якщо плівка оптично більш густа, ніж підкладка, то в s -поляризації умова (4) не виконується і зв'язок $\Delta = f(\Psi)$ формується лише в діапазоні $0 < \Psi \leq \frac{\pi}{4}$ (рис. 1,а).

3. При довільному співвідношенні в обох поляризаціях між показниками заломлень плівки і підкладки $n_{2,3}$, мінімумам контуру відбивання відповідає значення поляризаційного кута $\Delta = \frac{\pi}{2}, \frac{3\pi}{2}, \dots$. Функція $\text{tg } \Psi$ може проявляти як мінімум $\text{tg } \Psi \rightarrow \min$, коли $R_p(\alpha) \rightarrow \min$, так і максимум $\text{tg } \Psi \rightarrow \max$, коли $R_s(\alpha) \rightarrow \min$, якщо $n_2 < n_3$. При іншому співвідношенні між показниками заломлень $n_2 > n_3$, в s -поляризації псевдобрюстерівська кутова умова (2) не виконується і функція $\text{tg } \Psi$ проявляє лише мінімум.

При мінімальній товщині плівки мінімум контуру $R_p(\alpha)$ формується в околі псевдобрюстерівського кута α_{pB1} , а поляризаційний кут Δ змінюється в межах $0 < \Delta < \pi$. Для тих товщин плівки d , для яких мінімум контуру $R_p(\alpha)$ формується в околі іншого псевдобрюстерівського кута α_{pB2} , область зміни поляризаційного кута складає інтервал $\pi < \Delta < 2\pi$ (рис.1,б).

4. Оскільки кутова псевдобрюстерівська умова не заборонена для обох поляризацій, то з точки зору

обґрунтування базового рівняння еліпсометрії, для плоскопаралельної одношарової структури підхід $\rho = \frac{\tilde{r}_s}{\tilde{r}_p}$ рівноправний (1). Для нього спіраль крива сталої товщини розгортається дзеркально

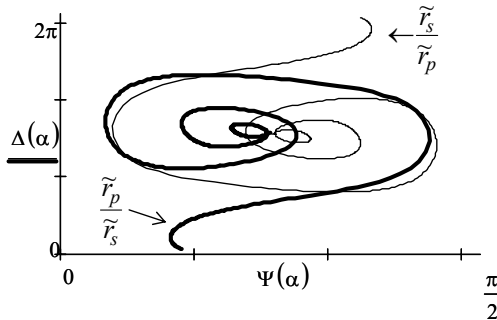


Рис. 2. Ілюстрація дзеркальної симетрії залежностей поляризаційних кутів Δ і Ψ від кута падіння. Параметри розрахунків: $d = 1750$ нм, $n_2 = 1,25$, $n_3 = 2,5$

симетрично класичному підходу (рис. 2).

Симетричні структури $\sigma_{12} = \sigma_{23} = \sigma$. В прозорих структурах у всіх мінімумах $R_{\min} = 0$, тому умова (2) виконується в обох поляризаціях для довільного кута падіння. За наявності в плівці поглинання, ступінь прояву багатопроменевої інтерференції зменшується і кутова залежність $R_s(\alpha)$ наближається до тієї, що описується формулами Френеля в цій поляризації для одинарної межі.

Висновок

Суть головного висновку роботи полягає в тому, що псевдобрюстерівська кутова умова, відома як умова просвітлення плівкового покриття [17] і визначальна у формуванні еліпсометричних кривих сталої товщини.

Додаток

В основу еліпсометрії покладена багатопроменева інтерференція світла в плоскопаралельній плівці. Нові можливості

застосування спектроскопії обвідних багатопроменевої інтерференції плоских хвиль в плівкових структурах обґрунтовані в роботі [18].

Суть псевдобрюстерівської кутової умови полягає в тому, що за певних співвідношень між параметрами середовищ, що утворюють одноплівкову структуру, експериментально вимірювані значення енергетичних коефіцієнтів в мінімумах відбиття $R_{\min} = \left(\frac{\sigma_{12} - \sigma_{23}\Omega}{1 - \sigma_{12}\sigma_{23}\Omega} \right)^2$ (в

максимумах $R_{\max} = \left(\frac{\sigma_{12} + \sigma_{23}\Omega}{1 + \sigma_{12}\sigma_{23}\Omega} \right)^2$) може досягати

нульового значення – так зване просвітлення плівкового покриття. Нагадаємо, що відоме в літературі рівняння просвітленої оптики $\sigma_{12} = \sigma_{23}$ обмежене лиш умовою нормального проходження променем меж і додатково вимагало, щоб товщина плівки дорівнювала цілому числу чверть хвиль $\frac{\lambda}{4}$.

Доповнивши вище наведені міркування до спектрів пропускання, для яких рівняння обвідних мають вигляд $T_{\max} = \frac{n_2 \cos \beta}{n_1 \cos \alpha} \frac{T_{12}T_{23}}{(1 \mp \sigma_{12}\sigma_{23}\Omega)^2} \Omega$

приходимо до висновку, що разом вони складають систему алгебраїчних рівнянь, які також дозволяють однозначно визначити параметри плівки при довільних значення товщини плівки, показників заломлень середовищ та куту падіння і стану поляризації випромінювання. Продемонструємо окремо це на прикладі симетричних і несиметричних структур.

Д1. Симетричні структури. Для них модулі $\sigma_{12} = \sigma_{23} = \sigma$. Тому з рівнянь для обвідних спектрів відбиття параметри Ω і σ однозначно визначаються як:

$$\Omega = \frac{\sqrt{R_{\max}} + \sqrt{R_{\min}}}{\sqrt{R_{\max}} - \sqrt{R_{\min}}} - \frac{2\sqrt{R_{\max}}\sqrt{R_{\min}}}{\sqrt{R_{\max}} - \sqrt{R_{\min}}} \frac{1}{\sigma}$$

і як розв'язок квадратного рівняння

$$\sigma^2 + \frac{\sigma}{2\sqrt{R_{\max}R_{\min}}} \left[\frac{(\sqrt{R_{\max}} - \sqrt{R_{\min}})^2}{(\sqrt{R_{\max}} + \sqrt{R_{\min}})} - \frac{4R_{\max}R_{\min}(\sqrt{R_{\max}} + \sqrt{R_{\min}})^2}{\sqrt{R_{\max}} + \sqrt{R_{\min}}} \right] + 1 = 0.$$

Якщо структура не поглинає світло, то $R_{\min} = 0$ і

$$\sigma_{\pm} = \frac{1 \pm \sqrt{1 - R_{\max}}}{\sqrt{R_{\max}}}.$$

Розв'язавши систему рівнянь для обвідних спектрів пропускання одержимо, що добуток $\sigma^2 \Omega = \frac{\sqrt{T_{\max}} - \sqrt{T_{\min}}}{\sqrt{T_{\max}} + \sqrt{T_{\min}}}$, а в області

прозорості $\sigma^2 = \frac{1 - \sqrt{T_{\min}}}{1 + \sqrt{T_{\min}}}$. Отже, комбінований аналіз

спектрів пропускання і відбиття дає можливість

визначити величини Ω і σ як $\Omega = \frac{\sqrt{\frac{T_{\min}}{R_{\min}}} - \sqrt{\frac{T_{\max}}{R_{\max}}}}{\sqrt{\frac{T_{\min}}{R_{\min}}} + \sqrt{\frac{T_{\max}}{R_{\max}}}}$

$$\text{і } \sigma^2 = \Omega \frac{\sqrt{T_{\min}} - \sqrt{T_{\max}}}{\sqrt{T_{\min}} + \sqrt{T_{\max}}}.$$

$$\sigma_{12} = \frac{1 + \sqrt{R_{\max} R_{\min}}}{\sqrt{R_{\max}} + \sqrt{R_{\min}}} \pm \sqrt{1 + \left[\frac{1 + \sqrt{R_{\max} R_{\min}}}{\sqrt{R_{\max}} + \sqrt{R_{\min}}} \right]^2} \quad \text{і}$$

добуток $\sigma_{23} \Omega = \frac{\sigma_{12} - \sqrt{R_{\max}}}{\sigma_{12} \sqrt{R_{\max}} - 1}$, а в геометрії на

пропускання $\sigma_{12} \sigma_{23} \Omega = \frac{\sqrt{T_{\max}} - \sqrt{T_{\min}}}{\sqrt{T_{\max}} + \sqrt{T_{\min}}}$.

Одержані співвідношення мають загальний характер і справджуються для прозорих і поглинальних структур, довільної геометрії досліду та стану поляризації плоскої хвилі.

Д2. Несиметричні структури, коли $\sigma_{12} \neq \sigma_{23}$. Для них в геометрії відбиття

- [1] M. Ghezzeo. Thickness calculations for s transparent film from ellipsometric measurements // *J. Opt.Soc.Amer.* **58**(3), pp.368-372 (1968).
- [2] R.M.A. Azzam, A.-R.M. Zaghoul, and N.M. Bashara. Ellipsometric Function of a Film-Substrate System: Applications to the Design of Reflection-Type Optical Devices and to Ellipsometry // *J. Opt. Soc.*, **65**, pp. 252-260 (1975).
- [3] R.M.A. Azzam, M. Elshazly-Zaghoul, and N.M. Bashara. Combined Reflection and Transmission Thin-Film Ellipsometry: A Unified Linear Analysis // *Appl. Opt.*, **14**, pp. 1652-1663 (1975).
- [4] R.M.A. Azzam, and A.-R.M. Zaghoul. Principal Angle, Principal Azimuth, and Principal-Angle Ellipsometry of Film-Substrate Systems // *J. Opt. Soc. Am.*, **67**, pp.1058-1065 (1977).
- [5] R.M.A. Azzam. Ellipsometry of Transparent Films on Transparent Substrates // *Surface Sci.*, **96**, pp. 67-80 (1980).
- [6] A.-R.M. Zaghoul, and R.M.A. Azzam. Constant-Psi Constant-Delta Contour Maps: Applications to Ellipsometry and to Reflection-Type Optical Devices // *Appl. Opt.*, **21**, pp. 739-743 (1982).
- [7] R.M.A. Azzam. Angle-of-incidence derivatives of the complex parallel and perpendicular reflection coefficients and their ratio for a film-substrate system // *Optica Acta.*, **30**(8), pp. 1113-1124 (1983).
- [8] U. Rossow, W. Richter. *Spectroscopic ellipsometry*, in: *Bauer G., Richter W. (Ed.)*, Optical Characterization of Epitaxial Semiconductor Layers, Springer, Berlin, pp. 69-128 (1996).
- [9] А.Б. Певцов, А.В. Селькин. Эффект Брюстера в спектрах экситонного отражения // *ЖЭТФ*, **83**(2), сс. 516-531 (1982).
- [10] R.M.A. Azzam and T.F. Thonn. Pseudo-Brewster and Second-Brewster Angles of an Absorbing Substrate Coated by a Transparent Thin Film // *Appl. Opt.*, **22**, pp.4155-4165 (1983).
- [11] П.С. Кособуцький, А.М. Моргуліс, А.Б. Данилов, М.С. Каркульовська. Моделювання кутових закономірностей спектрів відбиття світла тришаровими структурами з резонатором Фабрі-Перо // *УФЖ*, **50**(6), сс. 551-555 (2005).
- [12] П.С. Кособуцький. Инверсия по поляризации эффекта немонотонной угловой зависимости коэффициента отражения света тонкой пленкой на резонансно поглощающей подложке // *Журнал прикладной спектроскопии*, **72**(2), сс.277-279 (2005).
- [13] П.С. Кособуцький. Анализ условий возникновения добавочного минимума в области продольно-поперечного расщепления в экситонных спектрах отражения // *УФЖ*, **28**, сс. 1090-1091 (1983).
- [14] P.S. Kosoboutski. Amplitude-phase spectroscopy of resonant reflection of light by crystals with a Fabry-Perot interferometer at the surface // *Low Temperature Physics (Ukraine)*, **25**(10), pp. 818-822 (1999).
- [15] П.С. Кособуцький, О.П. Кушнір. Закономірності прояву бріюстерівської і псевдобріюстерівської кутових умов в спектрах відбиття світла тонким прозорим шаром // *УФЖ*, **52**(3), сс. 226229 (2007).
- [16] С.А. Коваленко, М.П. Лисица. Оптические размерные явления в тонких слоях золота и атомарных полупроводников // *Журнал прикладной спектроскопии*, **69**(3), сс. 388-394 (2002).
- [17] Дж. Кокс, Г. Хасс. Просветление покрытий для видимой и инфракрасной областей спектра. В кн. *Physics of Thin Films. Advances in Research and Development. Ed. G.Hass and R.Thun. Vol.II.*, 1964, Academic Press: New York and London (имеется перевод: Физика тонких пленок. Современное состояние исследований и технические применения, Т.2, М:Мир, 1967)

- [18] Б.К. Остафійчук, П.С. Кособуцький, А. Моргу ліс, О.П. Кушнір Прикладні аспекти спектроскопії поверхневих плівок методом обвідних інтерферограм Фабрі-Перо // Фізика і хімія твердого тіла, **8**(1), сс. 56-66 (2007)
- [19] Smacula A., Glstech. Ber., **19**, 377 (1941).

P.S. Kosobutsky¹, A. Morgulis², O.P. Kushnir³

Regularities of Manifestation of Pseudo Brewster Angular Condition in Ellipsometric Spectra of Single-Layered Structures

¹*Lviv Polytechnic National University, Bandera Str. 12, Lviv, 79646, Ukraine*

²*City University of New York, 199, Chambers Str., New York 10007, USA*

³*Lviv State Agrarian University, V.Velikogo Str. 1, Dubljany, Lviv region, 80381, Ukraine*

In this paper the light wave reflected from single-layered structure has been study theoretically. It is shown, that the characteristic changes for polarization parameters Ψ and Δ are caused by manifestation of the pseudo Brewster angular requirement.