

09

## Эллипсометрическая методика определения показателя поглощения полупроводниковых нанослоев *in situ*

© Н.Н. Косырев,<sup>1</sup> В.А. Швец,<sup>3,4</sup> Н.Н. Михайлов,<sup>3</sup> С.Н. Варнаков,<sup>1,2</sup> С.Г. Овчинников,<sup>1</sup>  
С.В. Рыхлицкий,<sup>3</sup> И.А. Яковлев<sup>1</sup>

<sup>1</sup> Институт физики им. Л.В. Киренского СО РАН,  
660036 Красноярск, Россия

<sup>2</sup> Сибирский государственный аэрокосмический университет им. акад. М.Ф. Решетнева,  
660014 Красноярск, Россия

<sup>3</sup> Институт физики полупроводников СО РАН,  
630090 Новосибирск, Россия

<sup>4</sup> Новосибирский государственный университет,  
630090 Новосибирск, Россия  
e-mail: kosyrev@inbox.ru

(Поступило в Редакцию 7 июня 2013 г.)

Разработан и реализован алгоритм, позволяющий на основании однозонных эллипсометрических изменений в процессе роста тонких полупроводниковых пленок решать обратную задачу эллипсометрии с целью определения показателя поглощения. Методика основана на анализе изменения эллипсометрических параметров  $\Psi$  и  $\Delta$  непосредственно в процессе роста. Апробация алгоритма проведена в процессе синтеза структур  $\text{Si}/\text{SiO}_2/\text{Si}(100)$  и  $\text{Hg}_{1-x}\text{Cd}_x\text{Te}$ .

В связи с бурным развитием нанотехнологий в последние годы актуальна проблема контроля физических свойств получаемых наноматериалов [1]. В частности, тонкопленочные гетероструктуры с чередованием полупроводниковых и магнитных слоев представляют интерес для спинтроники [2]. Одним из эффективных методов исследования таких структур является эллипсометрия, обеспечивающая чувствительность до одного монослоя, но при этом не оказывающая разрушающего воздействия на исследуемый образец [3,4]. Принцип метода эллипсометрии в измерении состояния поляризации светового пучка при отражении от любой отражающей системы. При этом измеряются эллипсометрические углы  $\Psi$  и  $\Delta$ , являющиеся функцией прежде всего оптических постоянных растущих слоев, которые несут информацию об их составе, кристаллической структуре и других особенностях материала [5–8]. Оптические постоянные можно определить по результатам непрерывного измерения эллипсометрических параметров в процессе синтеза слоя — так называемой кривой роста [8–11]. Однако точность их определения в этом случае часто бывает ограничена из-за шероховатости поверхности, образования возможных поверхностных слоев (оксидные пленки, возможные загрязнения поверхности и т. д.) или других несовершенств оптической модели [11].

Как правило, при непрерывных измерениях *in situ* используются однозонные эллипсометрические методики, т. е. проведенные при одном азимутальном положении оптических элементов. Это связано с тем, что изменять положения оптических элементов прибора во время синтеза пленок не всегда представляется возможным, так как характерная скорость роста соизмерима со скоростью вращения оптических элементов. Однозонные измерения, как известно, содержат неустраняемую

систематическую ошибку, обусловленную различными несовершенствами оптических элементов [12]. Поэтому использование однозонных зависимостей эллипсометрических параметров для точного решения обратной задачи эллипсометрии не всегда оказывается оправданным и может приводить к большим ошибкам, особенно при большой длительности эксперимента. Более достоверная информация в этом случае содержится в относительных изменениях эллипсометрических параметров, наблюдаемых в процессе роста [13]. Именно анализ относительных изменений параметров  $\Psi$ ,  $\Delta$  лежит в основе предлагаемой нами методики определения показателя поглощения, которая оказывается не столь чувствительна к описанным выше экспериментальным ошибкам.

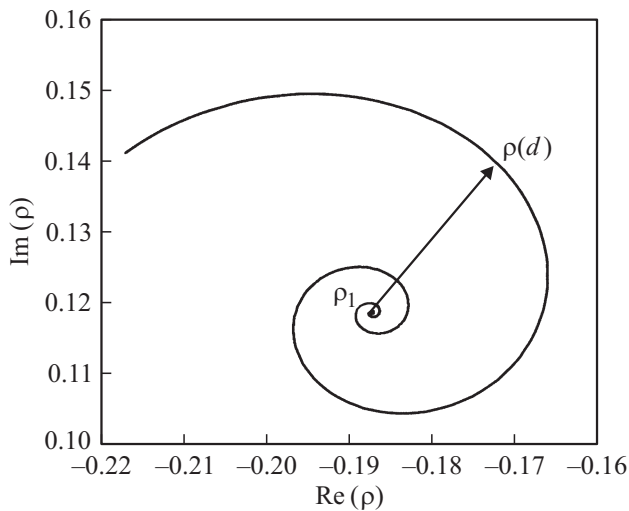
Рассмотрим однослойную модель: подложка (среда 2)–оптически однородный слой (среда 1)–вакуум (среда 0). Эллипсометрические параметры для такой модели как функции толщины слоя  $d$  выражаются следующим соотношением [3]:

$$\rho = \text{tg } \Psi \cdot e^{i\Delta} = \frac{r_{01p} + r_{12p}X}{1 + r_{01}r_{12p}X} \cdot \frac{1 + r_{01s}r_{12s}X}{r_{01s} + r_{12s}X}, \quad (1)$$

где  $r_{ijp,s}$  — коэффициенты Френеля для соответствующих границ раздела и различных поляризаций ( $p, s$ ),

$$X = \exp\left(-\frac{4\pi i}{\lambda} d \sqrt{N_1^2 - \sin^2 \varphi}\right),$$

$N_1 = n_1 - ik_1$  — комплексный показатель преломления растущего слоя,  $\varphi, \lambda$  — угол падения и длина волны света. При синтезе полупроводниковых слоев на полупроводниковой подложке оптический контраст на границе 12 значительно слабее, чем на границе 01, поэтому можно считать  $r_{12} \ll r_{01}$ . В этом случае уравнение (1) можно разложить в ряд по малому параметру,



**Рис. 1.** Расчетная кривая роста для системы слой HgCdTe ( $x = 0.3$ ) на подложке CdTe, отображенная в плоскости комплексного эллипсометрического параметра  $\rho$ .

ограничиваясь членами второго порядка включительно, и получить выражение для кривой роста

$$\rho = \rho_1(1 + A_1X + A_2X^2). \quad (2a)$$

Или в более удобном виде

$$\rho - \rho_1 = \rho_1 A_1 X + \rho_1 A_2 X^2, \quad (2b)$$

где  $\rho_1$  — комплексный эллипсометрический параметр, соответствующий бесконечно толстому (непрозрачному) слою ( $d \rightarrow \infty$ ),  $A_1 \gg A_2$  — коэффициенты разложения, зависящие от оптических постоянных слоя и подложки. Линейное по  $X$  слагаемое в (2) описывает логарифмическую спираль [3], которая сворачивается в комплексной плоскости  $\rho$  к точке  $\rho_1$  с квазипериодом  $d_0 = \frac{\lambda}{2\sqrt{N_1^2 - \sin^2 \varphi}}$ , как это изображено на рис. 1.

Радиус-вектор, описывающий текущее положение  $\rho$  относительно  $\rho_1$ , экспоненциально затухает с ростом  $d$ . Слагаемое, пропорциональное  $X^2$ , дает малую поправку к экспоненциальной зависимости радиуса-вектора, которая периодична с периодом  $d_0/2$ . Логарифмируя модули левой и правой частей выражения (2b) и ограничиваясь только линейным приближением, получим

$$\ln |\rho - \rho_1| = \ln(\rho_1 A_1) + \frac{4\pi}{\lambda} d \cdot \text{Im} \sqrt{N_1^2 - \sin^2 \varphi}. \quad (3)$$

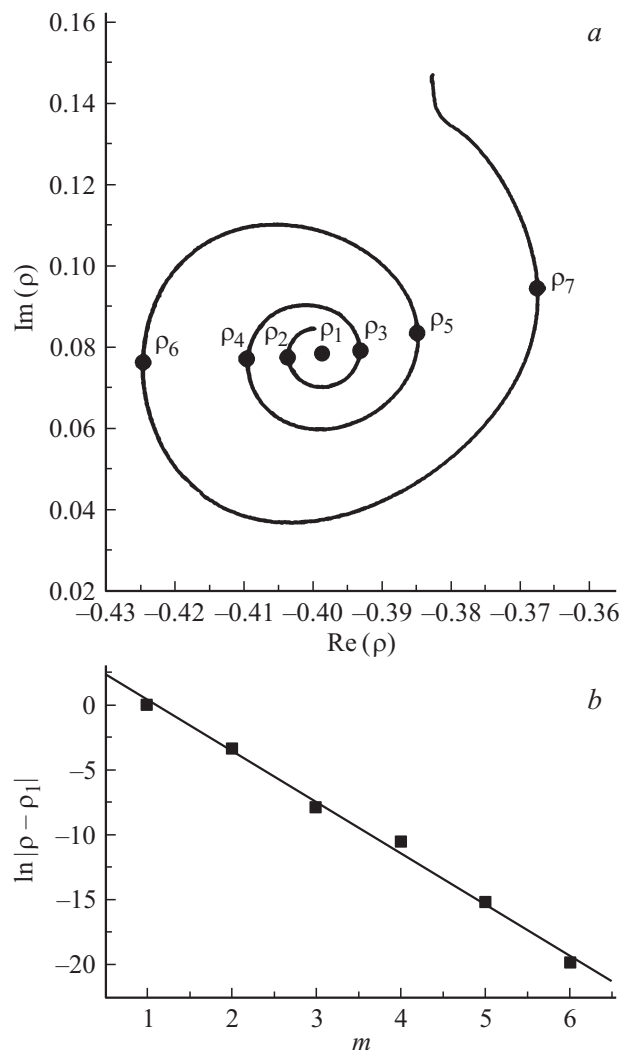
Для полупроводников имеет место  $k_1 \ll n_1$ , поэтому в подкоренном выражении можно пренебречь квадратными по  $k_1$  членами, а также слагаемым  $\sin^2 \varphi$ , которое тоже много меньше  $n_1^2$ . В итоге получаем для логарифма радиуса-вектора линейную по  $d$  зависимость

$$\ln |\rho - \rho_1| = \ln(\rho_1 A_1) - \frac{4\pi k_1}{\lambda} d. \quad (4)$$

Учет второго порядка малости в разложении (2a), (2b) добавляет к полученной зависимости (4) периодичное

слагаемое с периодом  $d_0/2$ , которое следует усреднять по периоду. В рамках рассмотренного приближения коэффициент при линейном члене зависит только от  $k_1$ . Тем самым появляется возможность экспериментального определения  $k_1$  по скорости сворачивания кривой роста, если известно, как при этом меняется толщина слоя. Чаще всего значение толщины неизвестно, поэтому удобно рассматривать зависимость  $\ln |\rho - \rho_1|$  не от толщины, а как функцию фазы множителя  $X$ , которая легко определяется экспериментально. В упрощенном варианте можно вместо фазы рассматривать номер витка спирали  $m$  (интерференционный период). Оба эти параметра — фаза и номер витка — пропорциональны толщине, поэтому линейная зависимость сохраняется. Однако в этом случае для определения  $k_1$  необходимо знать, хотя бы приближенно, величину  $n_1$ , так как она входит в выражение для  $X$  и  $d_0$ .

Экспериментальная апробация методики определения показателя поглощения была выполнена при синтезе тонких пленок аморфного кремния на подложках монокристаллического кремния Si(100), покрытого защитным



**Рис. 2.** Определение показателя поглощения для аморфной кремниевой пленки.

Значения состава пленок КРТ, определенные различными способами

Номер слоя	Коэффициент наклона $\beta$	Состав, определенный	
		по скорости сворачивания кривой роста	по предельной точке $\rho_1$
1	0.1716	0.535	0.54
2	0.2015	0.395	0.375
3	0.1773	0.505	0.51

слоем SiO<sub>2</sub> [14]. Напыление пленок кремния осуществлялось методом термического испарения в сверхвысоковакуумной камере [15] при комнатной температуре подложки. Эллипсометрические измерения проводились с помощью эллипсометра [16], интегрированного в вакуумную напылительную систему. Длина волны зондирующего излучения составляла  $\lambda = 632.8$ . На рис. 2, *a* представлены результаты эллипсометрических измерений, проведенных во время роста слоя Si. Здесь экспериментальные данные для удобства дальнейших расчетов представлены не в виде классических эллипсометрических параметров  $\psi$  и  $\Delta$ , а в виде действительной и мнимой частей комплексного эллипсометрического параметра  $\rho$ . Также на рисунке обозначены ( $\rho_1, \rho_2, \rho_3$  и т.д.) экстремумы функции  $\text{Re} \rho(d)$ , которые соответствуют различным интерференционным периодам. Чтобы найти показатель поглощения, необходимо построить зависимость логарифма радиуса-вектора от номера интерференционного периода  $\ln |\rho - \rho_1| = f(m)$ . В соответствии с формулой (3) эта зависимость близка к линейной, но обнаруживает слабые осцилляции (рис. 2, *b*) с периодом  $\pi$ , которые обусловлены квадратичным слагаемым (2, *a*). Еще одна возможная причина слабой нелинейности — это систематические погрешности, возникающие при однозонных измерениях, которые имеют период  $2\pi$ . Линейная аппроксимация экспериментальных кривых по нескольким интерференционным периодам позволяет устранить обе причины. Тангенс угла наклона полученной прямой в соответствии с (4) равен

$$\text{tg } \alpha = \frac{4\pi k_1}{\lambda} md, \quad (5)$$

где  $m$  — номер интерференционного периода.

Для исследуемого слоя Si значение показателя поглощения  $k_1$  составило  $0.48 \pm 0.02$ , которое для  $\lambda = 632.8$  nm соответствует аморфному кремнию [17].

Возможности предложенной методики также были продемонстрированы при определении состава пленок твердых растворов Cd<sub>x</sub>Hg<sub>1-x</sub>Te (КРТ), выращиваемых методом молекулярно-лучевой эпитаксии. Показатель поглощения КРТ, а следовательно, и скорость сворачивания кривых роста зависят от состава  $x$ . На рис. 3 показаны эллипсометрические кривые, измеренные в процессе выращивания пленок различного состава.

Пленки выращивались последовательно одна на другой в едином технологическом процессе. При данных условиях роста также возможно применение рассматриваемой методики, так как скорость сворачивания кривых

роста зависит только от оптических постоянных растущей пленки (по данным численного моделирования) и практически не зависит от оптических свойств исходной поверхности. Их этих экспериментальных кривых рассчитывали скорость сворачивания комплексного эллипсометрического параметра  $\rho$  к предельному значению  $\rho_1$ . Соответствующие зависимости для амплитуды  $\ln |\rho - \rho_1|$  от фазы  $\phi = \text{arctg}(\frac{\text{Im}(\rho - \rho_1)}{\text{Re}(\rho - \rho_1)})$  приведены на рис. 4.

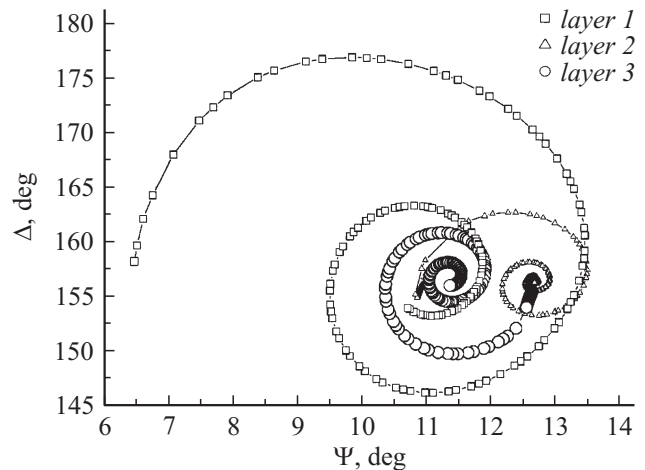


Рис. 3. Зависимости эллипсометрических параметров, измеренные по однозонной методике в процессе последовательного выращивания слоев КРТ различного состава ( $x_1 = 0.535$ ,  $x_2 = 0.395$ ,  $x_3 = 0.505$ ).

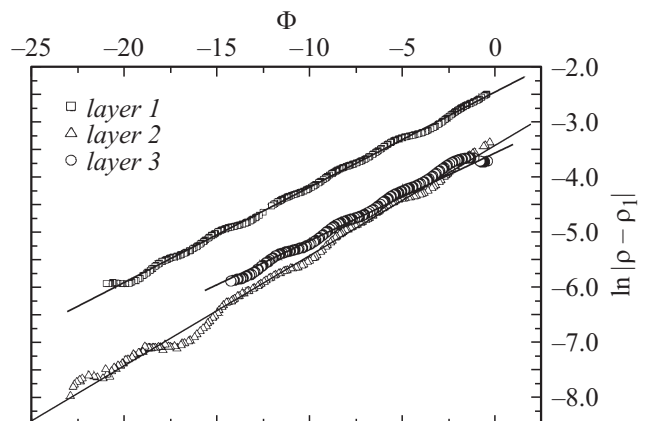
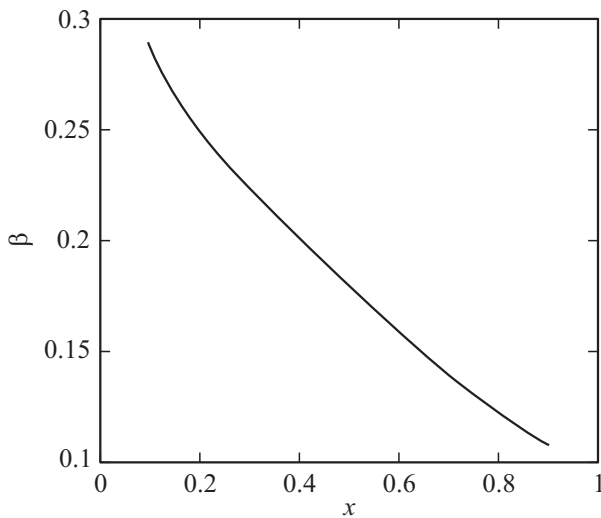


Рис. 4. Скорость сворачивания кривых роста для пленок КРТ различного состояния ( $x_1 = 0.535$ ,  $x_2 = 0.395$ ,  $x_3 = 0.505$ ) и их аппроксимация линейной зависимостью.



**Рис. 5.** Расчетная зависимость коэффициента наклона  $\beta$  от состава КРТ.

После линейной аппроксимации экспериментальных кривых по нескольким интерференционным периодам были определены их коэффициенты наклона  $\beta$ .

Из сравнения экспериментально найденных значений коэффициентов наклона с калибровочной кривой (рис. 5), полученной путем расчета  $\beta(x)$  с учетом измеренных ранее зависимостей оптических постоянных КРТ от состава при температуре роста [17], можно определить состав выращенных слоев (см. таблицу).

Для сравнения в таблице представлены также значения состава  $x$ , полученные по результатам измерения предельной точки кривой роста  $\rho_1$ , для которой применимы формулы полубесконечной среды [3]. Оба метода дают близкие результаты по определению состава  $x$ . Однако метод предельной точки более чувствителен к систематической погрешности измерений и к наличию поверхностных слоев, в частности, к шероховатости поверхности.

Таким образом, разработана методика оценки показателя поглощения, основанная на относительных изменениях эллипсометрических параметров  $\Psi$  и  $\Delta$  — скорости сворачивания кривой роста. Критерием применимости методики является достаточно слабое поглощение света, которое обеспечивается значением показателя поглощения  $k < 1$  (значение, полученное для длины волны  $\lambda = 632.8 \text{ nm}$  с помощью предварительного численного эксперимента) и, следовательно, может использоваться для определения показателя поглощения любых материалов с  $k < 1$ .

Следует отметить, что коэффициент наклона  $\beta$  определяется только оптическими постоянными растущего слоя. Он практически не зависит от наличия переходного или поверхностного слоев в структуре, которые могут значительно исказить форму кривой роста, делая невозможным определение оптических постоянных путем подгонки данных.

Существенным является то, что разработанная методика может применяться как при анализе роста однослойных пленок, так и многослойных структур, так как скорость сворачивания кривых роста зависит только от оптических постоянных растущей пленки и практически не зависит от оптических свойств исходной поверхности.

Работа выполнена при финансовой поддержке Министерства образования и науки Российской Федерации, государственный контракт 14.513.11.0016, соглашения 14.132.21.1709 и 14.В37.21.1276, гранта поддержки ведущей научной школы (проект НШ-1044.2012.2), Российского фонда фундаментальных исследований (грант № 13-02-01265), программы ОФН РАН № 2.4.1, программы Президиума РАН № 23.34, интеграционного проекта СО РАН–ДВО РАН № 85 и интеграционного проекта СО РАН № 38.

## Список литературы

- [1] *Aceev A.I.* // Российские нанотехнологии. 2006. Т. 1. № 1.2. С. 97.
- [2] *Varnakov S.N., Komogortsev S.V., Ovchinnikov S.G. et al.* // J. Appl. Phys. 2008. Vol. 104. P. 094 703.
- [3] *Азам Р., Башара Н.* Эллипсометрия и поляризованный свет. М.: Мир, 1981. 583 с.
- [4] *Fujiwara H.* Spectroscopic Ellipsometry. Principles and Application. Wiley, 2007. 369 p.
- [5] *Aspnes D.E.* // Thin. Sol. Films. 1993. Vol. 233. P. 1–8.
- [6] *Сухорукова М.В., Скороходова И.А., Хвостиков В.П.* // ФТП. 2000. Т. 34. Вып. 1. С. 57.
- [7] *Ястребов С.Г., Гордеев С.К., Гаррига М. и др.* // ФТП. 2006. Т. 40. Вып. 7. С. 850.
- [8] *Швец В.А., Михайлов Н.Н., Дворецкий С.А.* // Автометрия. 2011. Т. 47. № 5. С. 13–24.
- [9] *Duncan W.M., Henck S.A., Kuehne J.W. et al.* // J. Vac. Sci. Technol. B. 1994. Vol. 12. N 4. P. 2779.
- [10] *Варнаков С.Н., Комогорцев С.В., Bartolome J. и др.* // Физика металлов и металловедение. 2008. Т. 106. № 1. С. 54–58.
- [11] *Shvets V.A., Chikichev S.I., Pridachin D.N. et al.* // Thin Sol. Films. 1998. Vol. 313–314. P. 561–564.
- [12] *Швец В.А., Спесивцев Е.В., Рыхлицкий С.В.* // Опт. и спектр. 2004. Т. 97. № 3. С. 514–525.
- [13] *Швец В.А., Дворецкий С.А., Михайлов Н.Н.* // ЖТФ. 2009. Т. 79. Вып. 11. С. 41–44.
- [14] *Volkov N.V., Tarasov A.S., Eremin E.V. et al.* // J. Appl. Phys. 2011. Vol. 109. P. 123 924.
- [15] *Варнаков С.Н., Лепешев А.А., Овчинников С.Г. и др.* // ПТЭ. 2004. № 6. С. 125–129.
- [16] Пат. РФ № 2302623. Эллипсометр. / Е.В. Спесивцев, С.В. Рыхлицкий, В.А. Швец. 2007. Бюл. № 19.
- [17] *Aspnes D.E., Studna A.A.* // Phys. Rev. B. 1983. Vol. 27. N 2. P. 985–1010.