

05;07

## **Эллипсометрическое исследование релаксационных изменений оптических констант и степени неоднородности тонких пленок стеклообразного $As_2S_3$**

© М.И. Козак, В.Н. Жихарев, В.Ю. Лоя,  
И.П. Студеняк, И.И. Шпак, И.И. Турок

Ужгородский национальный университет, Украина

E-mail: mirko@tn.uz.ua

Институт электронной физики НАН Украины

Поступило в Редакцию 11 января 2006 г.

Определялись оптические константы тонких пленок толщиной  $\sim 2 \mu\text{m}$ , полученных термическим напылением в вакууме халькогенидного стекла  $As_2S_3$ , из эллипсометрических многоугловых измерений на длине волны He–Ne лазера  $\lambda = 0.6328 \mu\text{m}$  с учетом слабого поглощения, свойственного им в этой области спектра. Показаны релаксационные изменения оптических констант как свеженанесенных неотожженных, так и отожженных пленок этого состава, а также рассмотрена возможность качественной оценки их степени неоднородности, изменяющейся в процессе релаксационных структурных преобразований или воздействия других факторов.

PACS: 78.20.-e, 81.40.Tv

Халькогенидные стеклообразные полупроводники (ХСП), классическим из которых является трисульфид мышьяка, используются в основном как термо- и фоточувствительные материалы при изготовлении устройств записи информации [1]. Однако применение тонкопленочных структур на основе данных материалов, например в интегральной оптике, требует высокой стабильности их оптических параметров, достижение которой, особенно в области их слабого поглощения, является пока весьма проблематичным. Поиск решений данной проблемы может быть успешным при наличии оперативного метода неразрушающего контроля оптических констант пленок ХСП. Одним из таких методов является многоугловая эллипсометрия [2]. В работе [3] была показана возможность определения данным методом оптических констант пленок

некоторых составов  $As_xS_{100-x}$  — показателя преломления  $n$ , геометрической толщины  $h$ , а также коэффициента экстинкции  $\kappa$ , поскольку стеклам данных составов свойственно слабое поглощение в красной области спектра. В данной работе исследовались релаксационные изменения оптических констант пленок, полученных термическим осаждением в вакууме стекла стехиометрического состава  $As_2S_3$ .

В теоретической части работы по измеренным эллипсометрическим углам  $\Psi$  и  $\Delta$  при различных углах падения лазерного пучка  $\phi$  рассчитывались оптические константы пленок при помощи разработанной компьютерной программы. Как известно, из уравнения эллипсометрии

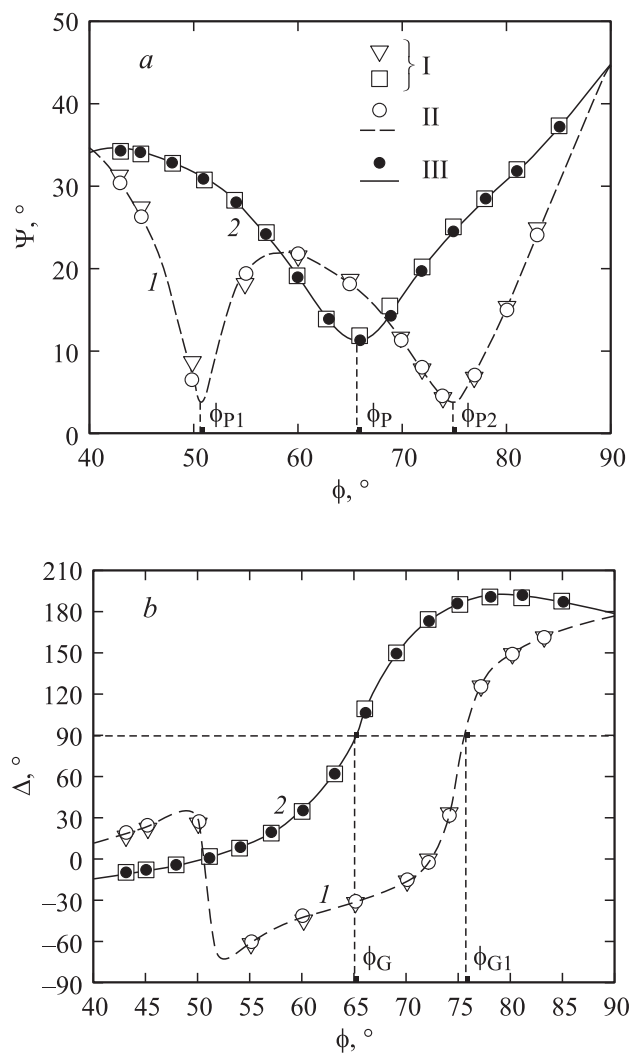
$$\operatorname{tg} \Psi \exp(i\Delta) = R_p/R_s, \quad (1)$$

где  $R_p, R_s$  — коэффициенты отражения для параллельной и перпендикулярной составляющих электрического вектора волны, не представляется возможным выразить неизвестные  $n, \kappa$  и  $h$  через эллипсометрические углы  $\Psi$  и  $\Delta$  в аналитическом виде. Поэтому нами применялся метод, заключающийся в том, что для массива измеренных эллипсометрических углов  $\Psi_i^*, \Delta_i^*$  при углах падения  $\phi_i, i = 1, \dots, M$ , где  $M$  — количество измерений (обычно  $5 \div 10$ ), минимизируется функция

$$\sigma(n, \kappa, h) = \frac{1}{M} \sum_{i=1}^M \sqrt{[\Psi_i^* - \Psi_i(n, \kappa, h)]^2 + [\Delta_i^* - \Delta_i(n, \kappa, h)]^2},$$

где  $\Psi_i, \Delta_i$  — эллипсометрические углы, рассчитанные из уравнения (1) при некоторых пробных вероятных значениях  $n, \kappa, h$  [2]. Расчеты производились в рамках модели однородной изотропной пленки на основе общей электромагнитной волновой теории. На границе пленка–подложка учитывался переходной слой, поэтому коэффициенты отражения  $R_p$  и  $R_s$  рассчитывались в целом для системы четырех сред „воздух–пленка–переходной слой–подложка“ путем сшивания решений волновых уравнений на каждой из границ этих сред.

Экспериментальные образцы пленок изготовлялись на полированных подложках из высококачественного кремния. Показатель преломления подложек определялся также эллипсометрическим методом, он составлял  $n_{Si} = 3.868 - i0.029$  (с учетом переходного окисного слоя толщиной  $90 \text{ \AA}$  с показателем преломления 1.156). Измерения производились при помощи эллипсометра ЛЭФ-3М-1 на длине волны



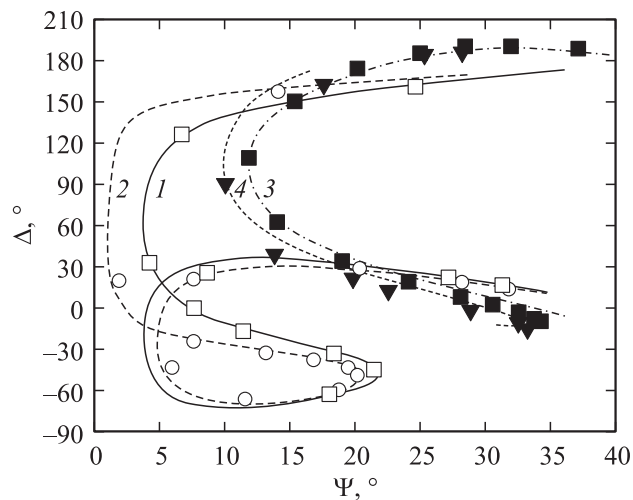
**Рис. 1.** Зависимость эллипсометрических углов  $\Psi$ ,  $\Delta$  от угла падения лазерного пучка  $\phi$ :  $a$  —  $\Psi(\phi)$ ;  $b$  —  $\Delta(\phi)$ ; 1 — свеженанесенная пленка, 2 — отожженная пленка; I — измерения, II, III — расчет.

Результаты расчета оптических констант пленок  $As_2S_3$ 

Состояние пленки	Диапазон угла падения $\phi$ , °	Оптическая толщина $hn$ , $\mu m$	Толщина пленки $h$ , $\mu m$	Показатель преломления $n$	Коэффициент экстинкции $\kappa$	Минимальное отклонение $\sigma$ , °
1-й день после напыления	43–50	5.520	2.204	2.505	$5 \cdot 10^{-4}$	0.89
	50–60	5.519	2.207	2.501	0.001	0.33
	60–74	5.524	2.236	2.470	$5 \cdot 10^{-4}$	1.38
	74–83	5.537	2.273	2.436	0.001	0.70
8-й день после напыления	43–51	5.531	2.211	2.502	$< 5 \cdot 10^{-4}$	1.17
	54–60	5.519	2.165	2.549	0.001	0.46
	60–75	5.541	2.240	2.474	$< 5 \cdot 10^{-4}$	0.99
	75–80	5.520	2.182	2.530	$5 \cdot 10^{-4}$	0.83
1-й день после отжига	43–51	5.368	2.155	2.491	$< 5 \cdot 10^{-4}$	0.38
	54–66	5.719	2.337	2.447	$< 5 \cdot 10^{-4}$	2.96
	66–75	5.664	2.201	2.573	$< 5 \cdot 10^{-4}$	2.01
	75–85	5.651	2.172	2.602	$< 5 \cdot 10^{-4}$	0.34
17-й день после отжига	43–53	5.380	2.129	2.527	$< 5 \cdot 10^{-4}$	0.58
	58–60	5.695	2.196	2.593	$< 5 \cdot 10^{-4}$	2.09
	71–78	5.650	2.164	2.611	$< 5 \cdot 10^{-4}$	1.33

He–Ne лазера  $\lambda = 0.6328 \mu m$  по схеме PCSA с усреднением по двум идеальным зонам при угле компенсатора  $C = -45^\circ$ . Свеженанпыленные пленки исследовались непосредственно после напыления, а также через некоторое время (8 дней) для определения релаксационных изменений оптических констант. Образцы отжигались при температуре несколько ниже температуры стеклования ( $T_g \approx 200^\circ C$ ):  $175-180^\circ C$  на воздухе в течение 1 h. Отожженные образцы исследовались непосредственно после отжига и через некоторое время после отжига (16 дней).

Показано следующее. Для свеженанпыленных пленок зависимость амплитудного эллипсометрического угла  $\Psi$  от угла падения лазерного пучка  $\phi$  такова, что существует два локальных минимума, т. е. два угла наибольшей поляризации в области оптимальных эллипсометрических измерений ( $45-85^\circ$ ): один  $\phi_{p1} \sim 50^\circ$ , а другой —  $\phi_{p2} \sim 75^\circ$ . После отжига вид зависимости  $\Psi(\phi)$  изменяется принципиально, наблюдается только один глобальный минимум и соответственно один угол наиболь-



**Рис. 2.** Диаграмма зависимости  $\Psi$ – $\Delta$  для различных состояний пленки: 1 — свеженапыленная, 2 — неотожженная через 7 дней, 3 — отоженная в первый день, 4 — отоженная через 16 дней (маркеры — точки измерений, линии — расчет с шагом по  $\phi$ , равным  $0.1^\circ$ ).

шей поляризации  $\phi_p \sim 65^\circ$ , как в классическом случае полубесконечной однородной изотропной среды (рис. 1, *a*). Зависимость фазового угла  $\Delta(\phi)$  также принципиально отличается для „свежей“ и отоженной пленок. Значения главных углов падения в данных двух случаях показаны на рис. 1, *b*. В связи с этим возникает вопрос, в какой области значений углов падения результаты являются достоверными. Мы провели расчет по различным интервалам возрастания и спада амплитудного угла  $\Psi$ , результаты представлены в таблице. Анализ результатов показывает, что данным пленкам свойственна большая степень анизотропии и релаксационной активности. Разница между максимальным и минимальным значениями показателя преломления по различным интервалам области значений угла падения может быть использована как степень неоднородности пленки. В процессе релаксации она уменьшается как для свеженапыленных, так и для отоженных пленок (см. таблицу). Как качественный показатель степени неоднородности можно использовать картину отклонения теоретической кривой, рассчитанной по

усредненным значениям оптических констант (вычисленные по всем углам  $\phi$ ) от экспериментальных точек на диаграмме зависимости эллипсометрических углов  $\Psi$ – $\Delta$  (рис. 2).

Заметим также, что становится объяснимым большой разброс в опубликованных данных значения показателя преломления пленок  $As_2S_3$  (ссылки на численные значения коэффициента экстинкции нам не известны). Так, в одной из ранних работ по этому вопросу [4] приводится  $n = 2.56$  для пленки толщиной  $0.3 \mu m$ , отожженной при  $170^\circ C$  в течение 1 h. В недавней работе [5] приведено для пленки толщиной  $0.9 \mu m$ , отожженной в атмосфере Ar в течение 1 h при температуре  $160^\circ C$  (измерения на эллипсометре UVISEL при углах  $55, 60, 65, 70$  и  $75^\circ$ ), значение показателя преломления  $2.59$ – $2.60$  (из графических данных). Для свежеприготовленных пленок, согласно [6], значения показателя преломления, полученные по эллипсометрическим измерениям при углах  $45, 48$  и  $50^\circ$ :  $n = 2.458$  ( $1 \mu m$ -пленка),  $n = 2.490$  ( $0.1 \mu m$ -пленка). Сравнение данных фактов с результатами настоящей работы приводит к выводу, что для согласования подобных исследований как для  $As_2S_3$ , так и для составов ХСП с похожими свойствами важно учитывать зависимость показателя преломления (в целом комплексного) от толщины и времени релаксации в первую очередь, что, по нашему мнению, наиболее эффективно можно реализовать с помощью метода эллипсометрии.

## Список литературы

- [1] Шварц К.К. Физика оптической записи в диэлектриках и полупроводниках. Рига: Зинатне, 1986.
- [2] Аззам Р., Башара Н. Эллипсометрия и поляризованный свет. М.: Мир, 1981.
- [3] Kozak M.I., Shpak I.I., Studenyak I.P. et al. // Materials on 2nd Intern. Workshop „Relaxed, nonlinear and acoustic optical processes; materials — growth and optical properties“. Lutsk: Veza, 2005. P. 43–45.
- [4] Аморфные полупроводники и приборы на их основе / Под ред. Й. Хамакавы. М.: Металлургия, 1986.
- [5] Franta D., Ohlidal I., Frumar M. et al. // Chalcogen. Let. 2004. V. 1. N 1.
- [6] Todorov R., Petkov K. // J. Opt. Advan. Mater. 2001. V. 3. N 2. P. 311–317.