

Спектральная эллипсометрия аморфного гидрогенизированного углерода, выращенного при магнетронном распылении графита

© С.Г. Ястребов, М. Гаррига*, М.И. Алонсо*, В.И. Иванов-Омский

Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе Российской академии наук,
194021 Санкт-Петербург, Россия

* Барселонский институт материаловедения,
ЦСИС 08193 Беллатерра, Испания

(Получена 3 февраля 2003 г. Принята к печати 4 февраля 2003 г.)

Методами спектральной эллипсометрии (в интервале энергий фотонов 1–5 эВ) измерены поляризационные углы для пленок аморфного гидрогенизированного углерода, полученного магнетронным распылением графита в атмосфере аргоно-водородной плазмы. Восстановлена дисперсия мнимой и действительной частей диэлектрической функции. Показано, что в исследуемой области частот полученные данные совместимы с формализмом Крамерса–Кронига. Использование правила сумм позволило сделать вывод о неоднородном распределении плотности состояний по энергиям и выявить характерные пороговые энергии в спектре эффективной плотности состояний — 2 и 3.8 эВ. Показана возможность описания энергетического спектра электронов с помощью гауссианов. Распределение состояний по энергиям связывается с вкладом σ - и π -состояний.

1. Введение

Изучение оптических свойств аморфного углерода важно с прикладной точки зрения — для диагностики процесса нанесения защитных покрытий [1] и оптимизации процесса синтеза алмазов [2,3]. Кроме того, результаты исследования оптических свойств аморфного углерода находят применение для решения задач рассеяния света в астрофизике [4]. Известно, что информация об оптических константах аморфного углерода может быть получена при обработке спектров пропускания и отражения [5], однако такая задача не является вполне корректной, так как из двух измеряемых параметров — коэффициента пропускания и коэффициента отражения — необходимо получить три неизвестных: показатель преломления, коэффициент экстинкции и толщину пленки. Задача может быть решена более точно при использовании эллипсометрических методов. В настоящей работе восстановлены по результатам эллипсометрического исследования оптические константы пленок аморфного гидрогенизированного углерода a -C:H, выращенного методом магнетронного распыления графита, [6] и проанализированы их особенности. Анализ проведен в предположении, что в диэлектрическую функцию вносят вклад как π -, так и σ -электроны.

2. Эксперимент

Технология изготовления пленок a -C:H подробно рассмотрена в работах [6,7]. Плотность пленок аморфного углерода определялась с помощью метода обратного резерфордского рассеяния и составила величину 1.79 г/см³ [6]. Измерения поляризационных углов Ψ и Δ проводились с использованием эллипсометра с вращающимся поляризатором. В качестве источника света использовалась ксеноновая лампа мощностью 75 Вт.

Для детектирования оптического сигнала использовался многоканальный фотоумножитель, расположенный у выходной щели решеточно-призмного монохроматора с фокусным расстоянием 750 мм. Описываемая установка позволяет проводить исследования в спектральном диапазоне 1.4–5.1 эВ с разрешением ~ 1 мэВ. Диэлектрическая функция подложки аморфного кварца измерялась при угле падения света на образец 65°. Спектральная зависимость эллипсометрических углов Ψ и Δ снималась в указанном диапазоне энергий фотонов с шагом 20 мэВ при углах падения 60, 65 и 70°.

3. Результаты и их обсуждение

На рис. 1 представлены спектры функций эллипсометрических углов исследованных образцов. Особенно исследованных слоев является близость показателя преломления подложки (аморфный кварц — 1.468)

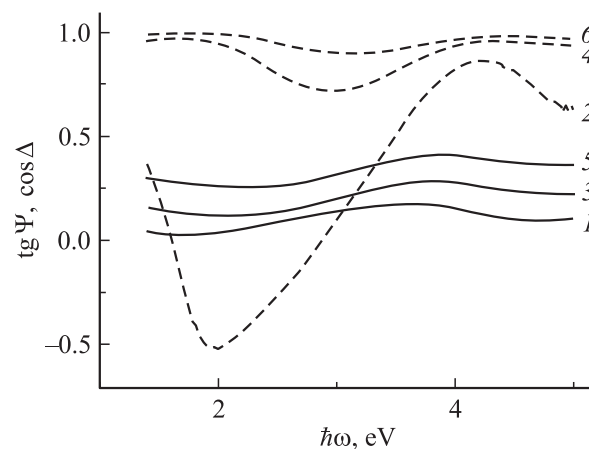


Рис. 1. Спектральные зависимости функций эллипсометрических углов: 1, 3, 5 — $\text{tg } \Psi$; 2, 4, 6 — $\text{cos } \Delta$. Угол падения света, град: 1, 2 — 60; 3, 4 — 65; 5, 6 — 70.

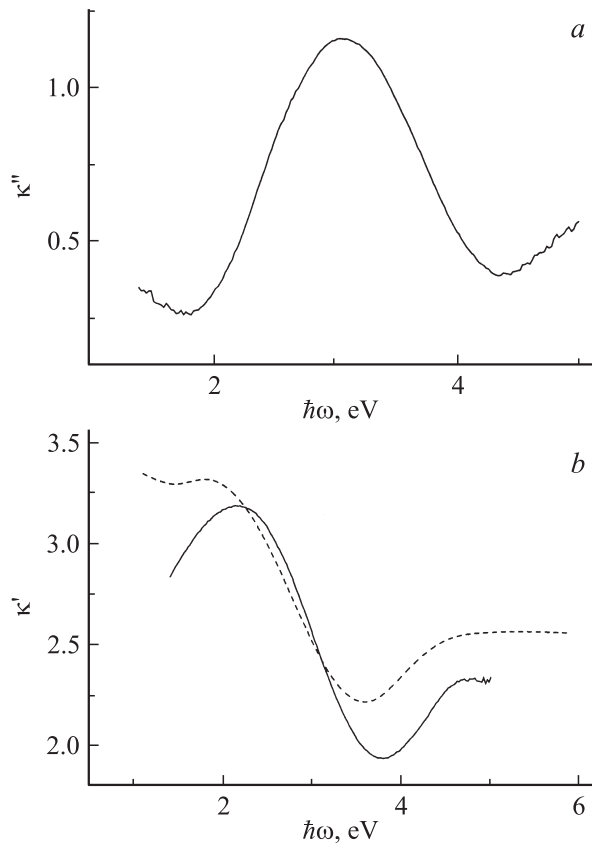


Рис. 2. Спектр диэлектрической функции: *a* — мнимая часть, *b* — действительная часть. Штриховая линия (*b*) — результат применения к $\kappa''(a)$ преобразования Крамерса–Кронига.

и пленки (~ 1.6) [8]. В этом случае величина коэффициента отражения от границы подложка–слой оказывается менее 0.5%, что позволяет им пренебречь. На рис. 2 показана дисперсия мнимой (κ') и действительной (κ'') частей диэлектрической функции, определенная стандартным методом [9] в этом приближении. Спектры, восстановленные из эллипсометрических измерений при разных углах падения, различаются не существенно, поэтому приведены усредненные кривые κ' и κ'' . Кроме того, на рис. 2, *b* приведена реальная часть диэлектрической функции, вычисленная в ограниченной области частот с применением преобразования Крамерса–Кронига к мнимой части диэлектрической функции. В расчете предполагалось, что мнимая часть обращается в нуль как при нулевой частоте, $\omega = 0$, так и при $\omega = \omega_p$, где ω_p — частота объемного плазмона. Согласно [10], для аморфного углерода $\hbar\omega_p = 22$ эВ при плотности 1.79 г/см³. Расхождение расчета и эксперимента связано с грубостью использования приближения. Однако даже в этом приближении видно, что в исследуемой области частот экспериментальные данные совместимы с формализмом Крамерса–Кронига.

Воспользуемся полученными значениями мнимой части диэлектрической проницаемости κ'' для определения числа электронов N в единице объема из правила

сумм [11]

$$g \equiv \frac{4\pi\hbar^2 N e^2}{m} = \frac{2}{\pi} \int_0^{\hbar\omega} \varepsilon \kappa''(\varepsilon) d\varepsilon. \quad (1)$$

Здесь ε , m , e — энергия, эффективная масса и заряд электрона соответственно. Результат расчета суммарной плотности электронов по формуле (1) представлен на рис. 3. Можно видеть на энергетической зависимости $g \propto N$ (плотности возбуждаемых электронов) появление двух перегибов, что, очевидно, соответствует особенностям в спектре плотности состояний электронов в исследованных пленках аморфного углерода. Дифференцируя данные рис. 3 по энергии, получаем спектр величины, которую назовем эффективной плотностью состояний $\rho(\omega)$. Полученный спектр $\rho(\omega)$ приводится на рис. 4. Там же показана аппроксимация спектра

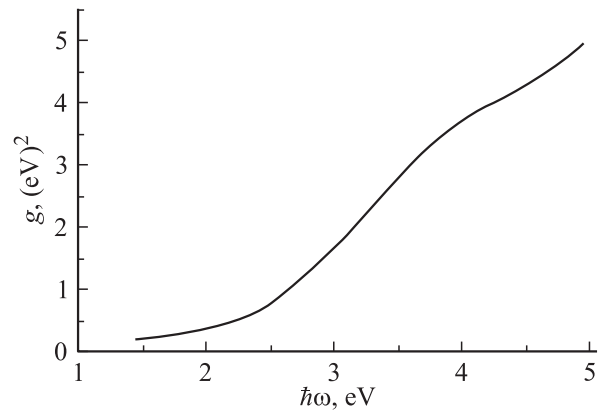


Рис. 3. Спектр суммарной плотности электронов согласно формуле (1) и данным рис. 2.

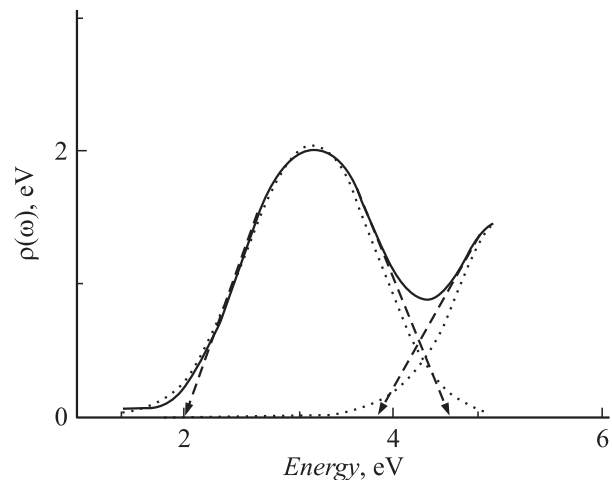


Рис. 4. Спектр эффективной плотности состояний. Сплошная линия — экспериментальные данные. Пунктирная линия — результат аппроксимации экспериментального спектра гауссовыми контурами; сумма двух гауссовых кривых совпадает с экспериментальными данными. Стрелками показаны характерные пороговые энергии.

с помощью двух гауссовых контуров, обеспечивающая наилучшее согласие с экспериментом. Возможность описания энергетического спектра эффективной плотности состояний с помощью гауссианов находится в соответствии с модельными представлениями работы [12].

Низкочастотный край спектра плотности состояний в аморфных полупроводниках обычно описывается моделью Тауца. Эта модель предполагает квадратичную зависимость энергии от квазиимпульса. В нашем случае край фундаментального поглощения, соответствующий низкочастотному порогу плотности состояний, может быть получен непосредственно линейной экстраполяцией, и, как показано на рис. 4, энергия равна 2 эВ. Этот результат сопоставим с экспериментальной величиной энергии края фундаментального поглощения в аморфном углероде, выращиваемом магнетронным распылением графита [7]. Линейная экстраполяция хода плотности состояний на рис. 4 позволяет выявить и второй (высокочастотный) порог, энергия равна ~ 3.8 эВ. Этот порог может быть приписан вкладу σ -состояний электронов. Возможность наблюдения вклада σ -состояний в энергетическом спектре аморфного гидрогенизированного углерода выгодно отличает эллипсометрический метод от обычно используемого метода измерения прямого оптического поглощения. Таким образом, результаты эллипсометрических измерений свидетельствуют о неоднородном распределении эффективной плотности состояний в a -C:H по энергии. Электронные состояния с энергиями оптических переходов в области 0–3.8 эВ формируются в a -C:H, скорее всего, π -электронами и образуют полосу шириной ~ 2.7 эВ, как показано на рис. 4. Поведение эффективной плотности состояний в области больших энергий может быть обусловлено влиянием σ -зоны.

4. Заключение

Спектральная эллипсометрия слоев аморфного углерода, полученного магнетронным распылением графита, позволила восстановить дисперсию мнимой и действительной частей диэлектрической функции. Показано, что в области энергий фотонов 1–5 эВ полученные данные совместимы с формализмом Крамерса–Кронига. Использование правила сумм позволяет сделать вывод о неоднородном распределении плотности состояний по энергиям и выявить характерные пороговые энергии в спектре эффективной плотности состояний, ~ 2 и ~ 3.8 эВ. Показано, что эффективная плотность энергетических состояний описывается суммой двух нормальных законов распределения. Неоднородность распределения состояний электронов по энергиям может быть приписана наличию вкладов σ - и π -состояний.

Авторы благодарят Российский фонд фундаментальных исследований (грант № 03-02-16289а) и испанский проект DGI MAT2001-1873 за частичную финансовую поддержку проводимой работы.

Список литературы

- [1] J. Angus, C.C. Hayman. *Science*, **24**, 913 (1988).
- [2] Q. Wang, R. Schliesing, H. Zacharias, V. Buck. *Appl. Surf. Sci.*, **138–139**, 429 (1999).
- [3] Q. Wang, V. Buck. *Appl. Surf. Sci.*, **180**, 255 (2001).
- [4] B.T. Draine, H.M. Lee. *Astrophys. J.*, **285**, 89 (1984).
- [5] В.И. Иванов-Омский, И.Н. Криворотов, С.Г. Ястребов. *ЖТФ*, **65**, 121 (1995).
- [6] Т.К. Звонарева, В.М. Лебедев, Т.А. Полянская, Л.В. Шаронова, В.И. Иванов-Омский. *ФТП*, **34** (9), 1135 (2000).
- [7] В.И. Иванов-Омский, А.В. Толмачев, С.Г. Ястребов. *ФТП*, **35** (2), 227 (2001).
- [8] Т.К. Звонарева, Л.В. Шаронова. *ФТП*, **33** (6), 742 (1999).
- [9] R.M.A. Azzam, N.M. Bashara. *Ellipsometry and polarized light* (Elsevier, Amsterdam, 1977).
- [10] A.C. Ferrari, A. Libassi, B.K. Tanner, V. Stolojan, J. Yuan, L.M. Brown, S.E. Rodil, B. Kleinsorge, J. Robertson. *Phys. Rev. B*, **62**, 11 089 (2000).
- [11] Л.Д. Ландау, Е.М. Лифшиц. *Электродинамика сплошных сред* (М., Наука, 1982).
- [12] В.И. Иванов-Омский, А. Таглиаферро, Г. Фанчини, С.Г. Ястребов. *ФТП*, **36** (1), 117 (2002).

Редактор Л.В. Шаронова

Spectral ellipsometry of amorphous hydrogenated carbon produced by magnetron sputtering of graphite

S.G. Yastrebov, M. Garriga*, M.I. Alonso*, V.I. Ivanov-Omskii

loffe Physicotechnical Institute,
Russian Academy of Sciences,
194021 St. Petersburg, Russia

* Institut de Ciencia de Materials de Barcelona,
CSIC 08193 Bellaterra (Spain)

Abstract Ellipsometric angles were measured in a spectral mode in the energy range 1–5 eV for thin films of amorphous carbon produced by magnetron sputtering of graphite in atmosphere of argon — hydrogen plasma. Dispersion of the imaginary and real parts of the dielectric function was restored. It is shown that for the frequency range the restored data are Kramers–Kronig consistent. The sum rules reveals two threshold energies for the effective density of states spectrum: 2 and 3.8 eV. Conclusion has been drawn regarding inhomogeneous distribution of effective density of states as a function of energy. This inhomogeneity was ascribed to a different contribution of σ and π states. The possibility of decomposition of the density of states energy dependence on the sum of two Gaussians has been demonstrated. It is in good agreement with the previously reported concept.