

МЕТАЛЛИЧЕСКИЕ ПОВЕРХНОСТИ И ПЛЁНКИ

PACS numbers: 07.60.Fs, 42.79.Wc, 67.80.dm, 73.20.Mf

Еліпсометричні властивості тонких плівок молібдену при збудженні поверхневих поляритонів

В. В. Лендел, О. В. Ломакіна, Л. Ю. Мельниченко, І. А. Шайкевич

*Київський національний університет імені Тараса Шевченка,
фізичний факультет,
просп. Акад. Глушкова, 4, корпус 1,
03680 Київ, Україна*

Експериментально поміряно за допомогою метода Бітті і теоретично обчислено згідно з тришаровою моделлю тонкої плівки залежності еліпсометричних параметрів від кута падіння світла на плівку для трьох тонких плівок молібдену при збудженні поверхневих поляритонів. Вимірюваними еліпсометричними параметрами були азимут відновленої лінійної поляризації і зсув фаз між p - та s -компонентами відбитого світла. Теоретичні розрахунки були виконані за допомогою рекурентних формул Ейрі. Проведені дослідження показали, що експериментальні і теоретичні залежності еліпсометричних параметрів від кута падіння мають ідентичний хід, але між ними є кількісні розходження. Останнє пояснюється тим, що у використаній теоретичній тришаровій моделі тонкої плівки Мо межі між шарами вважалися ідеально плоскими. В той же час реальні межі поділу є шерсткими і неоднорідними. Одержані результати показали, що середній шар плівки є металічним молібденом, а верхній і нижній шари є оксидами молібдену.

Экспериментально измерены с помощью метода Битти и теоретически вычислены в рамках трёхслойной модели тонкой плёнки зависимости эллипсометрических параметров от угла падения света на плёнку для трёх тонких плёнок молибдена при возбуждении поверхностных поляритонов. Измеряемыми эллипсометрическими параметрами были азимут восстановленной линейной поляризации и сдвиг фаз между p - и s -компонентами отражённого света. Теоретические расчёты были проведены по рекуррентным формулам Эйри. Проведённые исследования показали, что экспериментальные и теоретические зависимости эллипсометрических параметров от угла падения имеют идентичный ход, но между ними есть количественные расхождения. Последнее объясняется тем, что в использованной теоретической трёхслойной модели тонкой плёнки Мо границы между слоями считались идеально плоскими. В то же время реальные

границы раздела — шероховатые и неоднородные. Полученные результаты показали, что средний слой плёнки является металлическим молибденом, а верхний и нижний слои являются окислами молибдена.

Ellipsometric parameters as functions of the angle of incidence of light on a film for three thin films of molybdenum at the excitation of surface polaritons are experimentally measured with the use of the Beattie method and are theoretically calculated within the three-layer model of thin film. The measured ellipsometric parameters are the azimuth of a restored linear polarization and the phase shift between the p - and s -components of reflected light. Theoretical calculations are performed by the Airy recurrent formulas. The studies carried out show that the experimental and theoretical dependences of the ellipsometric parameters on the angle of incidence have the identical behaviour, but some quantitative differences are revealed. It can be explained by assumption that the interfaces between layers are ideally planar in the theoretical three-layer model of thin Mo film. At the same time, the real boundaries are rough and inhomogeneous. The results obtained demonstrate that the middle layer of film is metallic molybdenum, and the upper and lower layers are molybdenum oxides.

Ключові слова: поверхневі поляритони, тонкі плівки, оксид, тришарова модель, еліпсометрія.

(Отримано 19 вересня 2013 р.; остаточн. варіант — 14 січня 2014 р.)

1. ВСТУП

При еліпсометричних і рефлектиметричних вимірюваннях для тонких плівок із збудженням поверхневих поляритонів часто необхідно обчислювати оптичні параметри із застосуванням формул Ейрі [1]. В той же час формули Ейрі були виведені для експериментів без збудження поверхневих поляритонів, і в монографіях, присвячених поверхневим поляритонам [2, 3], нічого не говориться про можливість їх застосування у цьому випадку, і взагалі ці формули навіть не приводяться.

Вперше експериментальна перевірка можливості застосування формул Ейрі при збудженні поверхневих поляритонів була виконана для тонких плівок хрому і титану в [4]. Але у роботі [4] була використана загальновідома одношарова модель тонкої плівки, оптичні сталі якої значно відрізняються від оптичних сталей відповідного масивного металу. В [5] була запропонована тришарова модель тонких напівпрозорих плівок Мо і перевірена при еліпсометричних дослідженнях без збудження поверхневих поляритонів при зміні кута падіння світла на зразок. Аналогічні дослідження були проведені для тонких плівок Ті в [6]. Проведені експерименти показали, що запропонована модель дає хороші результати. Згідно проведених дослідів центральний шар в цій моделі має оптичні сталі маси-

вного металу, тобто є металічним Мо або Ті, а верхній і нижній шари є відповідними окислами цих металів. Нижній шар є перехідним шаром між металічною плівкою і діелектричною підкладкою, який відповідає за адгезію плівки. Але тришарова модель була застосована в [5] і [6] для ідеально гладких границь поділу шарів. В той же час границі поділу між шарами є шерсткими і неоднорідними. В цій роботі представлені результати перевірки можливості застосування тришарової моделі тонкої металічної плівки Мо із гладкими границями поділу при еліпсометричних дослідженнях із збудженням поверхневих поляритонів, які більш чутливі до неоднорідностей поверхні, ніж звичайна еліпсометрія.

2. МЕТОДИКА ЕКСПЕРИМЕНТУ

Досліджувані плівки молібдену наносились на скляні підкладки з показником заломлення $n = 1,52$ методом магнетронного напилення в атмосфері аргону при тиску $6,6 \cdot 10^{-1}$ Па. Попередньо напилювальна камера відкачувалась до тиску $1,33 \cdot 10^{-3}$ Па. Еліпсометричні вимірювання проводилися з використанням безкомпенсаторного методу Бітті. Поляризаційний гоніометр був з'єднаний з монохроматором. Довжина світлової хвилі в експерименті становила $\lambda = 550$ нм. Діапазон вимірюваних кутів падіння світла на зразок складав $35^\circ - 45^\circ$. Геометрія експерименту (рис. 1) відповідала збудженню поверхневих поляритонів за методом Кречмана, тобто відбите світло досліджувалось з боку підкладки.

Світло вводилося у скляну підкладку 1 з боку, протилежного до нанесеної плівки Мо, за допомогою полімерного напівциліндра 0 з показником заломлення $n = 1,59$ (вказано стрілкою).

З протилежного боку досліджувана плівка межувала з повітрям 5. Скляна підкладка 1 приклеювалася до напівциліндра за допомогою касторового масла з показником заломлення $n = 1,46$. На межах поділу між шарами 1–2, 2–3, 3–4, 4–5 тришарової моделі тонкої плівки Мо відбувалося відбивання та заломлення світла. У теоретичній моделі результуюча хвиля розраховувалася з використанням рекурентних формул Ейрі з урахуванням багаторазових відбивань від меж поділу з коефіцієнтами відбивання, що описувалися звичайними формулами Френеля для p - та s -компонент відбитого світла на кожній межі поділу. Як показали відповідні теоретичні розрахунки, шар касторового масла між напівциліндром і скляною підкладкою мало впливає на еліпсометричні параметри світла, що проходить через систему на рис. 1. Тому при теоретичних розрахунках еліпсометричних параметрів шар касторового масла на рис. 1 відсутній. Теоретичний розрахунок представляв собою розгляд оберненої задачі еліпсометрії Для отримання амплітудного коефіцієнту відбивання для багатошарового покриття, яке показане на рис. 1,

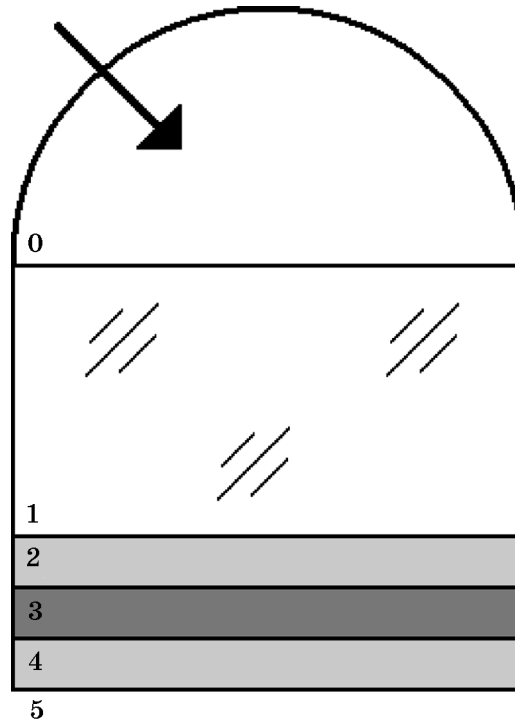


Рис. 1. Геометрія експерименту.

було використано рекурентні співвідношення Ейрі:

$$R_{s,p_i} = \frac{r_{s,p_i} + R_{s,p_{i+1}} e^{2ig_i}}{1 + r_{s,p_i} R_{s,p_{i+1}} e^{2ig_i}}, \quad (1)$$

де індекси i відносяться до шарів системи (відбивання на границі поділу середовищ i та $i + 1$), n_i та f_i — відповідні комплексні показники заломлення та кути падіння на шари.

Кути падіння f_i , які одночасно були кутами заломлення на попередній межі поділу, розраховувалися за законом Снелліуса за відомим початковим кутом входження світла в напівциліндр f_0 , який дорівнював куту падіння на скляну підкладку. Оскільки вирази для показників заломлення шарів 2, 3 і 4 є, взагалі кажучи, комплексними величинами (вигляду $\tilde{n} = n + ik$, де n — власне показник заломлення, k — показник поглинання), то і кути f_i також є комплексними.

У формулі (1) r_{s,p_i} — амплітудні коефіцієнти відбивання Френеля від межі поділу i -го та $(i + 1)$ -го шарів для відповідної компоненти світла, які мають вигляд:

$$r_{s_i} = \frac{n_i \cos(f_i) - n_{i+1} \cos(f_{i+1})}{n_i \cos(f_i) + n_{i+1} \cos(f_{i+1})}, \quad r_{p_i} = \frac{n_{i+1} \cos(f_i) - n_i \cos(f_{i+1})}{n_{i+1} \cos(f_i) + n_i \cos(f_{i+1})}; \quad (2)$$

g_i — фазова товщина i -го шару у вигляді $g_i = (2\pi/\lambda) n_i d_i \cos(f_i)$, де n_i та d_i — відповідно показник заломлення (n_i у загальному випадку комплексний) та товщина i -го шару відповідно, λ — довжина світлової хвилі; $R_{s,p_{i+1}}$ — амплітудний коефіцієнт відбивання від попереднього шару, розрахований за аналогічним співвідношенням, або рівний амплітудному коефіцієнту відбивання Френеля у випадку останньої межі поділу 4–5. Вищевказаний розрахунок проводився лише для відбитої хвилі, що вийшла з плівки у скляну пластинку. Обчислення результуючого амплітудного коефіцієнту відбивання проводилось з урахуванням інтерференції хвилі, що вийшла із скляної пластинки, відбившись від молібденової плівки, і хвилі безпосередньо відбитої на межі поділу полімерний напівциліндр–скляна пластинка 0–1, за формулами:

$$R_{1p} = \left[\left(|r_{0p}| \right)^2 + \left(|R_p| \right)^2 + 2 |r_{0p}| |R_p| \cos(\arg(r_{0p}) - \arg(R_p)) \right]^{1/2}, \quad (3)$$

$$R_{1s} = \left[\left(|r_{0s}| \right)^2 + \left(|R_s| \right)^2 + 2 |r_{0s}| |R_s| \cos(\arg(r_{0s}) - \arg(R_s)) \right]^{1/2}.$$

За наступними формулами визначалися відповідні еліпсометричні параметри, а саме тангенс азимута відновленої лінійної поляризації Ψ_1 і зсув фаз Δ_1 :

$$\operatorname{tg} \Psi_1 = \frac{|R_{1p}|}{|R_{1s}|}, \quad (4)$$

$$\Delta_1 = \arg(r_{0p}) + \arg(R_p) - \arg(r_{0s}) - \arg(R_s).$$

3. ЕКСПЕРИМЕНТАЛЬНІ РЕЗУЛЬТАТИ ТА ЇХ ОБГОВОРЕННЯ

Експериментальні дослідження і теоретичні розрахунки були виконані для трьох плівок Мо трохи різної товщини, які в подальшому позначаються, як Мо1, Мо2 і Мо3. Як вже відзначалося раніше, експериментальні вимірювання проводились за допомогою метода Бітті, а теоретичні розрахунки за допомогою формул (1)–(4). При теоретичних розрахунках використовувались дані для оптичних сталей всіх трьох шарів, одержані для тонких плівок Мо в [5], оскільки в експерименті були використані ті самі зразки плівок, що і в [5], але варіювалися товщини шарів з метою максимального наближення теоретичних і експериментальних результатів. Варіація оптичних сталей давала гірші результати співпадання теорії з экс-

периментом. Довжина світлової хвилі в експерименті і при розрахунках складала 550 нм. На рисунках 2 і 3 наведені залежності еліпсометричних параметрів, а саме $\text{tg}\Psi$ і $\cos\Delta$ від кута падіння світла φ , який співпадає з кутом f_0 при розрахунках за формулами (1)–(4) для плівки Mo1. Суцільні криві на обох рисунках відповідають теоретичним даним, а пунктирні — експериментальним результатам.

Наведені на рис. 2 і рис. 3 результати свідчать лише про якісний збіг теоретичних і експериментальних даних. Хід обох кривих на рисунках цілком ідентичний. Кількісне ж співпадання, на жаль, залишає бажати кращого, особливо для еліпсометричного параметру $\cos\Delta$. В той же час для еліпсометричних вимірювань без збудження поверхневих поляритонів кількісне співпадання залежностей

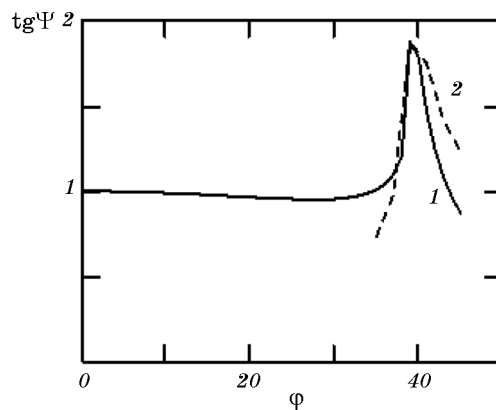


Рис. 2. Залежності $\text{tg}\Psi$ від кута падіння світла φ для плівки Mo1 (1 — теорія, 2 — експеримент).

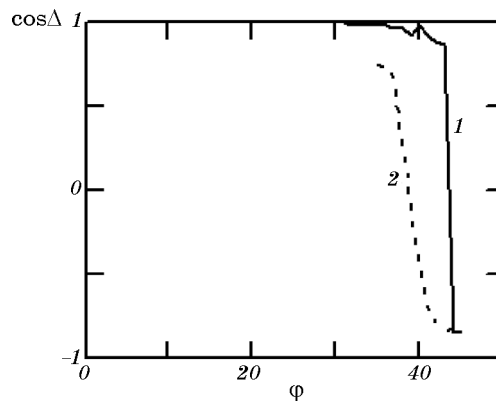


Рис. 3. Залежності $\cos\Delta$ від кута падіння світла φ для плівки Mo1 (1 — теорія, 2 — експеримент).

тей як величини $\text{tg}\Psi$, так і величини $\cos\Delta$ від кута падіння ϕ світла на зразок було цілком задовільне, що і показано в [5]. Кількісне розходження експериментальної і теоретичної кривих на рис. 2 і 3 можна пояснити наступним чином. В теоретичній моделі розглядалися ідеально гладкі межі поділу між шарами (рис. 1). У той же час реально межі поділу на рис. 1 є шерсткими і неоднорідними. При еліпсометрії без збудження поверхневих поляритонів це відчувається значно менше, бо довжина світлової хвилі λ значно більша за величину шерсткостей поверхні та її неоднорідностей.

Відомо, що в інфрачервоній ділянці спектру навіть матові поверхні служать, як хороші дзеркала. Плівки Мо в представленій роботі напилювались на оптично поліровані скляні пластинки і довжина робочої хвилі $\lambda = 550$ нм значно перевищувала величину середньо квадратичної шерсткості, яка для такого типу поліровки складає 10–15 нм. Таким чином при еліпсометричних вимірюваннях без збудження поверхневих поляритонів шерсткість поверхні відчувалася слабо.

В той же час поверхневі поляритони розповсюджуються по поверхні і відчують її шерсткості і неоднорідності в експериментальних дослідах значно сильніше, а в теорії межі поділу на рис. 1 вважалися ідеально плоскими. Останнє і може пояснити кількісне розходження теорії і експерименту на рис. 2, 3. Але цікавим є той факт, що середній шар 3 (рис. 1) в тонкій плівці Мо відповідає металічному молібдену, бо його оптичні сталі в межах похибки повністю співпадають з оптичними сталими масивного Мо, а в одношаровій моделі тонкої металічної плівки такого співпадання не буває.

Це добре ілюструє таблиця 1, де наведено оптичні константи і товщина середнього металічного шару 3 (рис. 1) для зразка МоЗ, обчислені для довжини хвилі $\lambda = 550$ нм по тришаровій моделі і обчислені для цього ж зразка по одношаровій моделі плівки по еліпсометрії без збудження поверхневих поляритонів, а також для порівняння наведено оптичні константи масивного молібдену.

Цікаво, що оптичні сталі перехідного шару 2 між металічною плівкою і діелектричною підкладкою відповідають оптичним сталим окислу типу MoO_3 , а оптичні сталі шару 4 між плівкою Мо і повітрям теж відповідають оптичним сталим окислу типу MoO_3 . Слід

ТАБЛИЦЯ 1. Порівняння оптичних констант для різних моделей плівки для зразка МоЗ і масивного зразка.

Модель	n	k	d
Одношарова плівка	1,5	2,2	16 нм
Тришарова плівка	3,5	3,5	11 нм
Масивний зразок	3,8	3,5	3 мм

звернути увагу ще на один цікавий факт на рис. 2. Поблизу кута повного внутрішнього відбивання для скла існує кутовий максимум для величини $\text{tg}\Psi$ і на теоретичних і на експериментальних кривих, який згідно [2] може бути пояснений тим, що максимальне збудження поверхневих поляритонів відбувається саме поблизу граничного кута повного внутрішнього відбивання. При цьому величина $\text{tg}\Psi$ значно перевищує одиницю, чого не може трапитись у випадку звичайної еліпсометрії, де величина $\text{tg}\Psi$ не може перевищувати одиницю. Останнє пояснюється тим, що при збудженні поверхневих поляритонів p -компонента відбитого світла збуджується сильніше ніж s -компонента.

На рисунках 4, 5 і рисунках 6, 7 наведено аналогічні залежності $\text{tg}\Psi$ і $\cos\Delta$ для схожих зразків Mo_2 і Mo_3 , а в табл. 2 товщини всіх

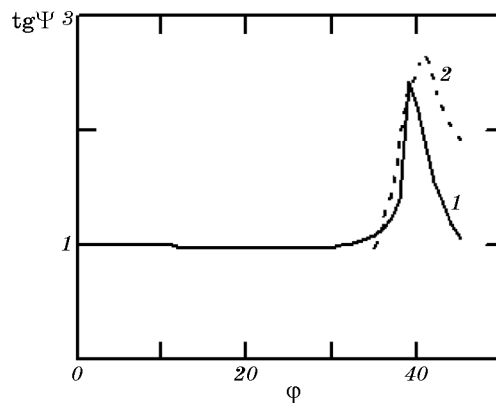


Рис. 4. Залежності $\text{tg}\Psi$ від кута падіння світла φ для плівки Mo_2 (1 — теорія, 2 — експеримент).

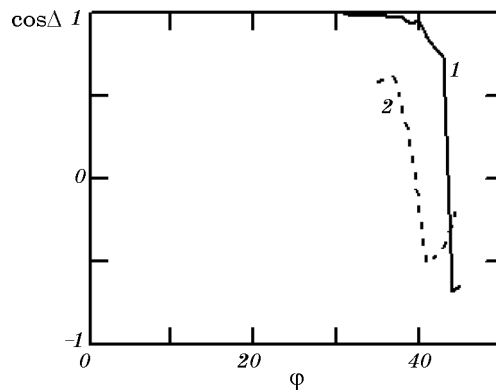


Рис. 5. Залежності $\cos\Delta$ від кута падіння світла φ для плівки Mo_2 (1 — теорія, 2 — експеримент).

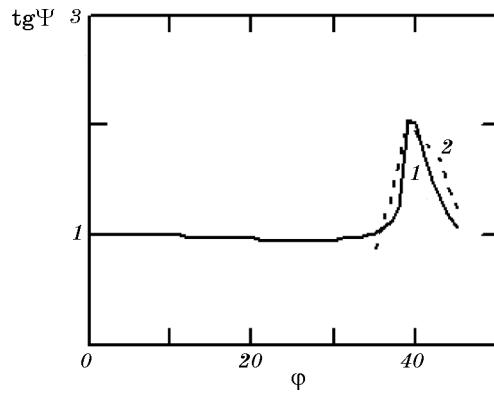


Рис. 6. Залежності $\text{tg}\Psi$ від кута падіння світла φ для плівки МоЗ (1 — теорія, 2 — експеримент).

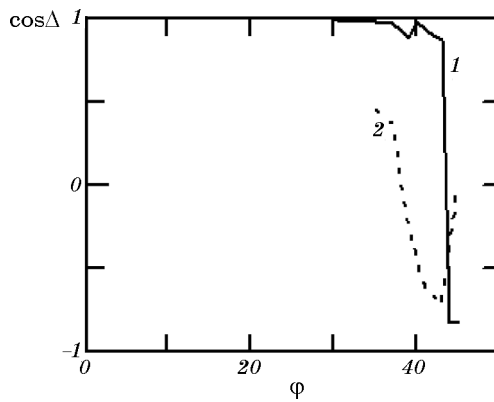


Рис. 7. Залежності $\cos\Delta$ від кута падіння світла φ для плівки МоЗ (1 — теорія, 2 — експеримент).

трьох шарів досліджених плівок молібдену в нанометрах.

З рисунків 4–7 випливає, що, як і для зразка Мо1, для схожих з ним зразків Мо2 і Мо3 має місце тільки якісне співпадання експериментальних і теоретичних результатів, а кількісне співпадання

ТАБЛИЦЯ 2. Товщини трьох шарів досліджених плівок Мо в нанометрах.

Зразок	d_2	d_3	d_4
Мо1	1	12	4,5
Мо2	1	9,5	5
Мо3	1	11	6

залишає бажати кращого. Пояснення цьому може бути таке саме, як і для зразка Мо1. Більше того, з рис. 4 видно, що для зразка Мо2 має місце найбільше розходження теоретичних і експериментальних результатів.

Проведені дослідження поверхні всіх трьох зразків на атомно-силовому мікроскопі показали, що зразок Мо2 має найгіршу поверхню. Останнє і може призводити до такого розходження, яке має місце на рис. 4. Дані, наведені в табл. 2, свідчать, що перехідний шар окису між плівкою і підкладкою значно тонший ніж шар окису на поверхні плівки.

4. ВИСНОВКИ

1. На основі одержаних даних можна зробити висновок, що при еліпсометричних дослідженнях із збудженням поверхневих поляритонів тришарова модель із ідеально плоскими границями поділу шарів плівки дає гірші результати ніж еліпсометрія без збудження поляритонів, оскільки поверхневі поляритони чутливіші до шерсткості і неоднорідності поверхні, а запропонована теоретична модель плівки розглядає ідеально пласкі межі поділу і вимагає таким чином вдосконалення з урахуванням неоднорідностей цих границь.

2. Тришарова модель плівки при еліпсометричних дослідженнях із збудженням поверхневих поляритонів для всіх трьох схожих зразків Мо дає більш реальні результати ніж загальноприйнята одношарова модель, для якої оптичні сталі не співпадають з оптичними сталими масивного молібдену.

3. Одержані результати показують, що середній шар плівки для всіх трьох схожих зразків є чистим молібденом, а верхній і нижній шари відповідно окислами типу MoO_3 , як це було показано і в еліпсометричних дослідженнях без збудження поверхневих поляритонів.

ЦИТОВАНА ЛІТЕРАТУРА

1. М. Борн, Э. Вольф, *Основы оптики* (Москва: Наука: 1970).
2. *Поверхностные поляритоны* (Ред. В. М. Агранович, Д. Л. Миллс) (Москва: Наука: 1985).
3. Н. Л. Дмитрук, В. Г. Литовченко, В. Л. Стрижевский, *Поверхностные поляритоны в полупроводниках и диэлектриках* (Киев: Наукова думка: 1989).
4. L. Yu. Melnichenko, Ya. A. Shybiko, and I. A. Shaykevich, *Functional Mater.*, **13**, No. 1: 161 (2006).
5. В. В. Лендел, О. В. Ломакіна, Л. Ю. Мельниченко, І. А. Шайкевич, *Металлофиз. новейшие технол.*, **32**, № 8: 1013 (2010).
6. V. V. Lendel, O. V. Lomakina, L. Yu. Melnichenko, and I. A. Shaykevich, *Semi-*

conductor Physics, Quantum Electronics & Optoelectronics, **13**, No. 3: 231 (2010).

REFERENCES

1. M. Born and E. Wolf, *Osnovy Optiki* (Moscow: Nauka: 1970) (in Russian).
2. *Poverkhnostnye Polyaritony* (Eds. V. M. Agranovich and D. L. Mills) (Moscow: Nauka: 1985) (in Russian).
3. N. L. Dmitruk, V. G. Litovchenko, and V. L. Strizhevskiy, *Poverkhnostnye Polyaritony v Poluprovodnikakh i Dielektrikakh* (Kiev: Naukova Dumka: 1989) (in Russian).
4. L. Yu. Melnichenko, Ya. A. Shybiko, and I. A. Shaykevich, *Functional Mater.*, **13**, No. 1: 161 (2006).
5. V. V. Lendel, O. V. Lomakina, L. Yu. Melnichenko, and I. A. Shaykevych, *Metallofiz. Noveishie Tekhnol.*, **32**, No. 8: 1013 (2010) (in Ukrainian).
6. V. V. Lendel, O. V. Lomakina, L. Yu. Melnichenko, and I. A. Shaykevich, *Semiconductor Physics, Quantum Electronics & Optoelectronics*, **13**, No. 3: 231 (2010).