

ФИЗИЧЕСКАЯ ОПТИКА

УДК 535-45; 535-92; 535.512

ПОИСК ПЕРВОНАЧАЛЬНОГО ПРИБЛИЖЕНИЯ ПРИ РЕШЕНИИ ОБРАТНЫХ ЗАДАЧ В ЭЛЛИПСОМЕТРИИ И СПЕКТРОФОТОМЕТРИИ

© 2011 г. Б. М. Аюпов*, доктор техн. наук; И. А. Зарубин**, В. А. Лабусов**, доктор техн. наук;
В. С. Суляева*; В. Р. Шаяпов*

* Институт неорганической химии им. А.В. Николаева СО РАН, г. Новосибирск

** Институт автометрии и электрометрии СО РАН, г. Новосибирск

E-mail: ayupov@niic.nsc.ru

Рассмотрен подход к поиску первоначальных условий при решении обратных оптических задач по определению показателей преломления и толщины диэлектрических пленок на подложках. Предлагается использование спектров отражения, полученных при разных углах падения света на образец, из которых по местоположению экстремумов интенсивности вычисляются показатели преломления и толщина пленок. В монохроматической нулевой эллипсометрии измерение параметров поляризации света при разных углах падения позволяет для каждого угла определить показатель преломления и эллипсометрическую толщину. Первоначальное приближение толщины для решения обратной задачи в эллипсометрии на основе данных для всех использованных углов падения света на образец получается из оптической толщины пленки, определенной по спектрам отражения при малых углах падения.

Ключевые слова: обратные задачи, первоначальное приближение, тонкие пленки, спектрофотометрия, эллипсометрия.

Коды OCIS: 240.0310, 260.2130, 240.6490, 310.6860.

Поступила в редакцию 15.10.2010.

При изучении структур пленка/подложка показатель преломления, коэффициент поглощения и толщина пленок определяются методами спектральной и монохроматической эллипсометрии и спектрофотометрии путем решения обратных задач [1]. Для этого полученные из эксперимента интенсивности прошедшего или отраженного от образца света или параметры поляризации отраженного света (углы Ψ и Δ) сравниваются с интенсивностями или параметрами поляризации, рассчитанными при использовании оптических моделей образцов. В монохроматической нулевой эллипсометрии вначале используется однослойная модель, а далее принимаются во внимание отклонения от этой модели. Эти отклонения обусловлены наличием поглощения света в пленке, изменением ее показателя преломления по толщине, клиновидностью пленки, переходными слоями между пленкой и ее границами с подложкой и атмосферой, оптической анизотропией плен-

ки и подложки, шероховатостью границ раздела и неоднородностью пленки, нарушенным механической или плазменной обработкой слоем подложки [2].

При решении обратных задач одним из этапов процесса является поиск первоначального приближения. Естественно, что такое приближение следует искать при использовании неразрушающих методов, таких как эллипсометрия и спектрофотометрия. Первоначальное приближение должно заключаться прежде всего в поиске оптической толщины пленки, ее показателя преломления, геометрической толщины. Желательно также перед решением обратных задач иметь представление о послойном строении пленки исходя, например, из механизма ее получения [3].

Целью данной работы является демонстрация возможностей спектрофотометрии и монохроматической нулевой эллипсометрии при выборе первоначального приближения.

Образцы и методики

Синтез пленок BC_xN_y осуществлялся методом химического осаждения из газовой фазы при пониженном давлении путем разложения смеси летучего молекулярного предшественника – триэтиламинборана $(C_2H_5)_3N \cdot BH_3$ с азотом. Экспериментальная установка для синтеза пленок из паров летучих соединений описана в работе [4]. Осаждение пленок проводилось в следующих экспериментальных условиях: общее давление 4,6 Па, остаточное давление воздуха в реакторе 0,7 Па, температура подложек варьировалась от 773 до 1073 К, температура источника триэтиламинборана поддерживалась постоянной и равной 295 К. При этом парциальное давление его паров в реакторе составляло 3,2 Па, давление N_2 – 0,7 Па. В качестве подложек использовались полированные пластины кремния с ориентацией поверхности (100), размеры подложек не превышали 10×10 мм, что обусловлено поисковым характером проводимого исследования и, следовательно, малым количеством используемого молекулярного предшественника.

Спектры отражения были получены при углах падения света на образец 20°, 45°, 70°, 80° при использовании многоканального спектрометра “Колибри-2”, созданного по схеме Эберта–Фасти на основе плоской дифракционной решетки и линейки фотодиодов [5]. Его оптическая схема и конструкция оптимизированы для получения спектра высокого качества с низким уровнем фонового излучения в любой из областей, лежащих в спектральном интервале 190–1100 нм. Выбор рабочей области осуществлялся путем смены и поворота дифракционных решеток. Герметичный корпус спектрометра был наполнен азотом с избыточным давлением 30 кПа. Линейка фотодиодов использовалась в бескорпусном исполнении. Стабилизация температуры линейки осуществлялась с помощью двухкаскадного термоэлектрического модуля Пельтье и цифрового датчика температуры, находящегося в тепловом контакте с кристаллом линейки. Входная щель шириной 7, 15 или 25 мкм была выполнена методом фотолитографии на слое алюминия, нанесенном на поверхность сапфировой подложки. Для автоматической калибровки за входной щелью размещался электромеханический затвор, перекрывающий доступ излучения в спектрометр. Излучение вводилось в спектрометр с помощью квар-

цевого конденсора или волоконно-оптического кабеля.

Спектрометр имел следующие технические характеристики:

рабочий спектральный диапазон –	190–1100 нм,
разрешение –	1 нм,
динамический диапазон (при однократной регистрации спектра) –	10^4 ,
уровень рассеянного света –	0,05%,
фокусное расстояние –	100 мм,
относительное отверстие –	1:6,
количество фотодиодов –	2580,
размеры фотодиода –	12,5×1000 мкм,
минимальное время экспозиции –	8 мс,
максимальное время экспозиции –	не ограничено,
габариты –	150×200×80 мм,
масса –	3 кг.

В качестве источника излучения использовался комбинированный источник DH-2000-DUV фирмы Ocean Optics, излучающий в диапазоне 190–2000 нм. Свет от источника излучения направлялся на исследуемый образец пленки с помощью волоконно-оптического кабеля, при этом образец освещался параллельным пучком диаметром 5 мм, далее отраженное от него излучение направлялось в спектрометр “Колибри-2” также через волоконно-оптический кабель.

Приставки для получения спектров отражения были изготовлены по схеме, изображенной на рис. 1. Использование этой схемы позволяет получать спектры без введения дополнительных зеркал [6], что повышает интенсивность

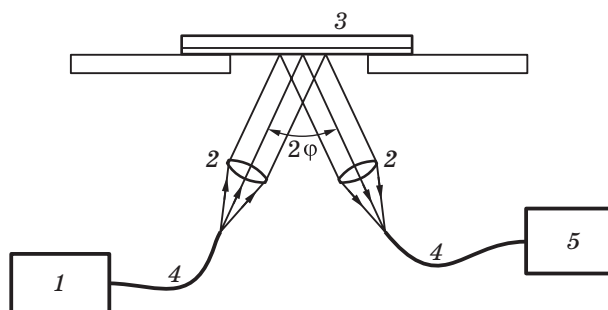


Рис. 1. Схема спектрофотометрической установки и приставки для снятия спектров отражения. 1 – источник света, 2 – коллиматоры, 3 – образец, 4 – волоконно-оптические кабели, 5 – спектрометр.

и стабильность регистрируемого сигнала и дает возможность работать с малыми образцами.

Эллипсометрические измерения проводились на эллипсометре ЛЭФ-3М, оптическая схема которого включала источник света (одно-модовый лазер с длиной волны 632,8 нм), поляризатор, компенсатор, образец, анализатор, приемник света (фотоэлектронный умножитель). Для уменьшения влияния засветок в приборе использовалось синхронное детектирование, при котором усиление сигнала с приемника ведется на частоте вращения модулятора, расположенного до поляризатора. Соответствие показаний азимутальных шкал поляризатора, компенсатора и анализатора положениям их оптических осей в плоскости падения и плоскости образца проводилось по методике, требующей изотропного образца [7].

Результаты

На рис. 2 приведены спектры отражения пленки карбонитрида бора, полученной при температуре 923 К, при углах падения света на образец 20° (1) и 45° (2). По местоположению экстремумов интенсивности на этих спектрах (λ_{extr}) можно определить оптическую толщину (произведение геометрической толщины на показатель преломления) пленок, используя формулу двухлучевой интерференции [8]

$$4dn_1 \cos \varphi_1 = (m + \delta)\lambda_{\text{extr}}, \quad (1)$$

где d и n_1 – толщина пленки и ее показатель преломления, φ_1 – угол преломления, m – целое

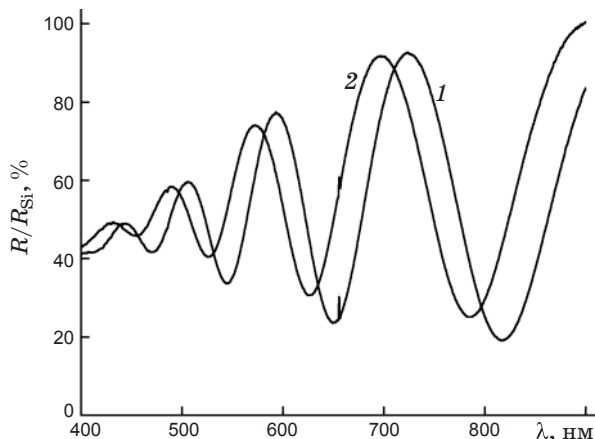


Рис. 2. Спектры отражения пленки карбонитрида бора на кремниевой подложке для угла падения света на образец 20° (1) и 45° (2). Интенсивность нормирована на спектр отражения подложки.

число (порядок интерференции), δ – поправка на поглощение в подложке. Эти поправки могут быть рассчитаны по формулам, приведенным в работе [9]. Для длины волны 633 нм и кремниевой подложки имеет место константа $N_{\text{Si}} = 3,85 - i0,023$ и $\delta = 0,001$; для подложки из золота $N_{\text{Au}} = 1,68 - i5,31$ и $\delta = 0,074$; для подложки из платины $N_{\text{Pt}} = 1,43 - i3,78$ и $\delta = 0,111$; для медной подложки $N_{\text{Cu}} = 4,40 - i3,32$, что соответствует $\delta = 0,046$ (величины приведены для сравнения).

Для кремниевой подложки в видимой области спектра можно принять $\delta = 0$. Тогда для малых углов падения света на образец и двух соседних экстремумов

$$dn_1 = \frac{\lambda_m \lambda_{m+1}}{4(\lambda_m - \lambda_{m+1})}. \quad (2)$$

Представленные на рис. 2 спектры можно использовать и для оценки показателей преломления пленок [9]. Для этого применяется формула, которая выводится из уравнения (1) при учете формулы Снеллиуса [10]. Получается система уравнений на основании измерения положений экстремума $\lambda_{\text{extr}}^{(1)}$ при одном угле падения света на образец $\varphi_0^{(1)}$ и экстремума $\lambda_0^{(2)}$ при другом угле $\varphi_0^{(2)}$:

$$4d\sqrt{n_1^2 - n_0^2 \sin^2 \varphi_0^{(1)}} = m\lambda_{\text{extr}}^{(1)}, \quad (3)$$

$$4d\sqrt{n_1^2 - n_0^2 \sin^2 \varphi_0^{(2)}} = m\lambda_{\text{extr}}^{(2)}. \quad (4)$$

Если обозначить

$$\left[\lambda_{\text{extr}}^{(20^\circ)} / \lambda_{\text{extr}}^{(45^\circ)} \right]^2 = \beta,$$

то

$$\left(\frac{n_1}{n_0} \right)^2 = (\sin^2 20^\circ - \beta \sin^2 45^\circ) / (1 - \beta). \quad (5)$$

В табл. 1 представлены результаты расчета по формулам (2) и (5) при использовании данных рис. 2.

Таблица 1. Местоположение экстремумов интенсивности света для двух углов падения света на образец и результаты вычисления толщины и показателя преломления пленки карбонитрида бора

Экстремум	$\lambda(20^\circ)$, нм	$\lambda(45^\circ)$, нм	β	n_1	dn_1 , нм	d , нм
min	651	628	1,037	2,36	1603	685
max	591	571	1,035	2,32		

Показатель преломления пленки можно оценить из эллипсометрических измерений при одном угле падения света на образец. В этом случае по двум полученным из эксперимента значениям углов Ψ и Δ решается обратная задача по модели, содержащей пять параметров: показатель преломления и коэффициент поглощения подложки, показатель преломления, коэффициент поглощения и толщина пленки. При этом константы подложки должны быть известны, пленка считается непоглощающей, сплошной и однослойной. Методы решения подобных задач основаны на решении уравнений [11], решении обратных задач [12] и использовании номограмм [13].

В табл. 2 приведены параметры поляризации отраженного света, показатели преломления и толщина пленок для каждого угла падения света на образец, вычисленные по методу Холмса [11]. Видно, что показатель преломления меняется при изменении угла падения света на образец незначительно, кроме данных для угла падения света на образец 50° и 75° . Эти отклонения могут быть вызваны большим влиянием оптических констант подложки. Из остальных решений можно сделать вывод, что в первом приближении пленку в данном образце можно считать однослойной. В большинстве работ, в которых измерения толщины пленок проводились методом монохроматической нулевой эллипсометрии, именно измерение при единственном угле падения света на образец считалось решением обратной задачи.

Для однослойной непоглощающей пленки в монохроматической эллипсометрии толщина определяется по формуле [13]

$$d = d_{\text{элл}} + md_0, \quad (6)$$

$$d_0 = \lambda / \left(2\sqrt{n_1^2 - \sin^2\varphi} \right). \quad (7)$$

Приведенное в табл. 2 значение $m = 5$ получено путем деления толщины пленки, вычисленной из спектрофотометрических данных (табл. 2), на d_0 . Таким образом, первоначальное приближение для решения обратных задач методами эллипсометрии и спектрофотометрии найдено. Дальнейшее решение основано на минимизации целевых функций S , один из вариантов которых может быть выражен следующим образом:

$$S = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N \left(\frac{\Psi_{i\text{exp}} - \Psi_{i\text{calc}}}{\delta\Psi_{i\text{exp}}} \right)^2 + \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N \left(\frac{\Delta_{i\text{exp}} - \Delta_{i\text{calc}}}{\delta\Delta_{i\text{exp}}} \right)^2, \quad (8)$$

где N – число углов падения света на образец, $\Psi_{i\text{calc}}$ и $\Delta_{i\text{calc}}$ – расчетные углы Ψ и Δ для i -го угла падения по принятой модели, $\Psi_{i\text{exp}}$, $\Delta_{i\text{exp}}$ – экспериментально определенные углы со случайными погрешностями $\delta\Psi_{i\text{exp}}$, $\delta\Delta_{i\text{exp}}$. В отличие от решений, приведенных в табл. 2, в этом случае оптические константы подложки не фиксируются и пленка может быть поглощающей. Решение обратных задач по однослойной модели дает представление о толщине пленки и ее показателе преломления. На самом деле пленка имеет две границы раздела: с подложкой и со средой [2]. Поэтому самой простой оптической моделью можно считать как раз трехслойную модель. Естественно, что по-

Таблица 2. Эллипсометрические данные для непоглощающей однослойной пленки и констант кремния $3,85 - i0,023$

φ , град.	Ψ	Δ	n_1	$d_{\text{элл}}$, нм	d_0	$d_{\text{элл}} + md_0$, нм
50	17°29'	165°30'	1,32	132,7		
55	13°19'	149°45'	2,71	51,5	122,5	664
60	10°29'	124°49'	2,71	48,7	123,2	665
65	9°51'	89°24'	2,71	46,2	123,9	666
70	12°30'	55°36'	2,71	44,1	124,5	667
75	17°59'	33°17'	2,82	48,8	119,4	649
80	25°40'	18°57'	2,73	40,8	124,3	662

Примечание. $m = 5$.

следовательность использования оптических моделей должна соблюдаться по принципу: от простого – к сложному. Поэтому после решения обратной задачи по однослойной модели, путем минимизации целевой функции S методом деформируемого многогранника [14], было получено решение по двухслойной модели. В этой модели показатель преломления слоя, граничащего с атмосферой, задавался немного меньшим.

Решение обратной задачи, выполненное при соблюдении условий, изложенных в статье [14], при использовании трехслойной модели и данных параметров поляризации отраженного света (углов Ψ и Δ) по всем углам падения света на образец ϕ приведено в табл. 3. Здесь S представляет собой разницу между параметрами поляризации отраженного света, полученными из эксперимента и рассчитанными по трехслойной модели. Расчет по формуле (5) по данным, полученным при исследовании образца методом спектрофотометрии, дал значение показателя преломления 2,34, что сравнимо со значением 2,67, найденным из эллипсометрических данных. Естественно, что значения толщины пленки, полученные методами спектрофотометрии (табл. 1) и монохроматической эллипсометрии по одному углу падения света на образец (табл. 2) и сразу по семи углам (табл. 3), совпадают. Однако решение, приведенное в табл. 3, может свидетельствовать об изменении показателя преломления по толщине пленки и о наличии переходного слоя между пленкой и средой, что является весьма полезной информацией.

Для поиска первоначального приближения следует обращать внимание на величину экстремумов интенсивности света, обусловленных интерференционными явлениями. При этом необходимо проводить сравнение этих интенсивностей с таковыми, полученными при отражении или пропускании через подложку.

Таблица 3. Результаты решения обратной задачи по параметрам поляризации отраженного света на основе полученных приближений табл. 1 и 2

Вещество	n	k	d_i , нм	Σd_i , нм
BC_xN_y	2,46	0,001	10,5	$n_{cp} = 2,67$
BC_xN_y	2,57	0,001	323,3	
BC_xN_y	2,76	0,001	337,7	
Si	3,64	0,024	$S = 27'$	

Совпадение этих интенсивностей может свидетельствовать о том, что пленка – непоглощающая и сплошная, имеет гладкие границы раздела со средой и подложкой, что отсутствуют градиент показателя преломления по толщине пленки (профиль показателя преломления [3]) и градиент толщины по площади образца (клиновидность пленки). Любые отклонения от этих условий могут влиять на местоположение экстремумов и интенсивность как в спектрах отражения, так и в спектрах пропускания. Для спектров пропускания наличие пленки на обратной стороне подложки также влияет на интенсивность в ее экстремумах. Для иллюстрации влияния однородности по толщине пленок рассчитаны спектры пропускания по формулам, приведенным в [9], при использовании программ на языке Фортран IV. На рис. 3 спектр 1 – интенсивность света, прошедшего через подложку с пленками толщиной 0,1 нм на обеих ее сторонах (будем считать это спектром пропускания чистой подложки); спектр 2 рассчитан для однослойной пленки толщиной 200 нм с показателем преломления 2,09; 3 – спектр той же пленки, разделенной на два слоя по 100 нм с разными показателями преломления (1,88 – около подложки и 2,30 – на границе со средой); 4 – спектр двухслойной пленки с показателями преломления 2,30 и 1,88. Видно, что даже при постоянной оптической толщине спектры пропускания зависят от чередования показателей преломления по толщине пленок. Возможные варианты этого чередования можно оценивать путем сравне-

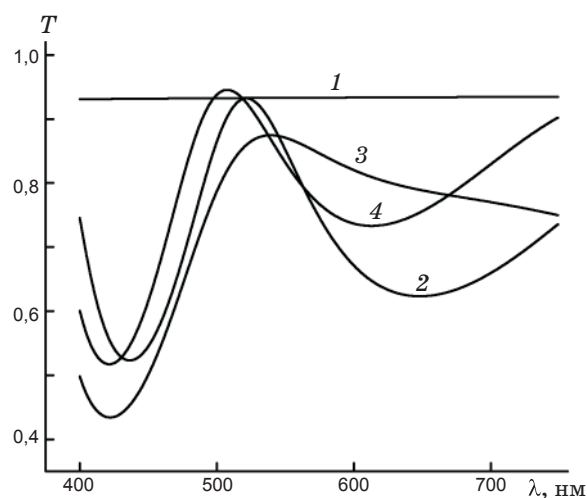


Рис. 3. Рассчитанные спектры пропускания. 1 – спектр подложки, 2 – однослойной пленки, 3, 4 – спектры двухслойных пленок.

ния интенсивности света в интерференционном максимуме с интенсивностью света, пропущенного через чистую подложку. Для спектра 2 они совпадают, спектр 4 обнаруживает просветляющий эффект, в спектре 3 интенсивность света в максимуме значительно меньше интенсивности света, пропущенного чистой подложкой.

Иногда при достаточной толщине пленки спектры, полученные при разных углах падения света на образец, могут существенно отличаться (рис. 4).

На рис. 4 приведены спектры отражения пленки карбонитрида бора при углах падения света на образец 20° и 80° относительно чистой кремниевой подложки, отражение от которой считалось равным 100 единицам. На первом спектре (1) заметно, что интенсивность не одинакова в соседних максимумах, что обусловлено неоднослойностью пленки, а на втором спектре (2) число экстремумов практически удваивается. Увеличение числа экстремумов в этом случае можно объяснить влиянием поляризации света. На рис. 5 приведены рассчитанные для однослойной пленки толщиной 1250 нм спектры отражения при угле падения света на образец 80° в зависимости от поляризации. Там же приведены и спектры отражения подложек (4 и 5). Сравнение экспериментально полученных (рис. 4, кривая 2) и рассчитанных (рис. 5, кривая 1) спектров отражения показывает, что угол наклона плоскости поляризации к плоскости падения близок к 45° . Если источник света не имеет преимущественной поляризации, то после усреднения по всем углам поляризации он как раз и может быть описан углом наклона средней поляризации к плоскости падения под углом 45° .

Из вышеизложенного видно, что при снятии спектров отражения использование разных углов падения позволяет оценивать показатели преломления пленок, их оптическую толщину и геометрическую толщину. Для этого необходимо для каждого угла падения света на образец изготавливать отдельное приспособление. Применение стеклянных призм с напыленными на их поверхностях металлическими пленками [6], выполняющих функцию отражающих зеркал, также подразумевает изготовление для каждого угла падения света на образец отдельного приспособления. Для решения многих задач в оптике может оказаться полезным “оптический конструктор” на гониометре типа ГС-5 [15] совместно со спектрометром “Колибри-2”, который позволит получать спектры отраже-

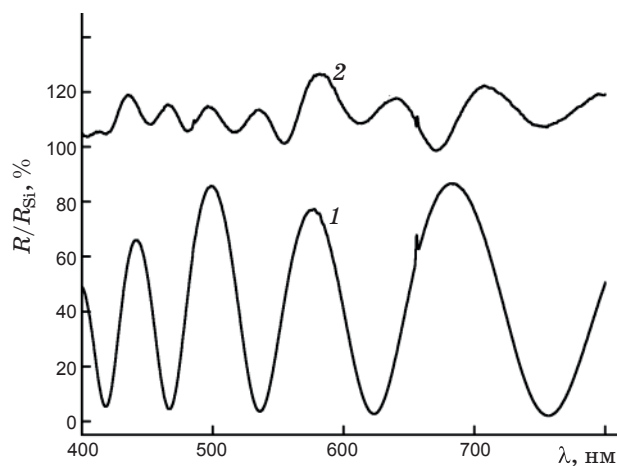


Рис. 4. Экспериментально полученные спектры отражения пленки карбонитрида бора на кремнии. 1 – при угле падения света на образец 20° , 2 – при угле падения 80° . Интенсивность нормирована по спектру отражения подложки.

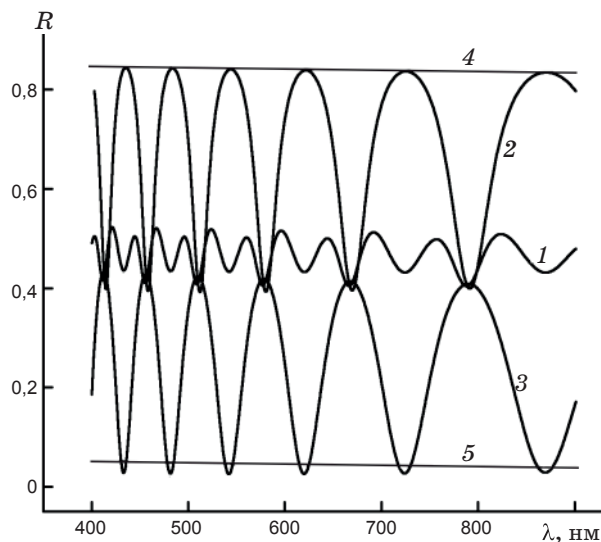


Рис. 5. Рассчитанная интенсивность отраженного света при угле падения света на образец 80° для падающего линейно поляризованного света. 1 – плоскость поляризации света наклонена под углом 45° к плоскости падения, 2 – плоскость поляризации находится в плоскости падения, 3 – плоскость поляризации перпендикулярна плоскости падения, 4 и 5 – подобные спектры для чистых подложек.

ния при плавной установке углов падения света на образец с погрешностью $\pm 05''$. При этом может плавно варьироваться и угол наблюдения.

Таким образом, при использовании спектрофотометрии совместно с нулевой монохроматической эллипсометрией можно найти первоначальное приближение для решения обратной

задачи по модели однослойной пленки. Предложенная оптическая схема приставок для получения спектров при разных углах падения света на пленку позволяет определить, в первом приближении, ее толщину и показатель преломления. Дальнейшее решение обратных

задач по многослойным оптическим моделям помогает найти вариант распределения показателей преломления по толщине пленки.

Авторы благодарят Президиум РАН (Проект № 6 Программы № 27) за поддержку этой работы.

* * * * *

ЛИТЕРАТУРА

1. Аззам Р., Башара Н. Эллипсометрия и поляризованный свет. М.: Мир, 1981. 583 с.
2. Аюпов Б.М. Выбор моделей для исследования систем диэлектрическая пленка-подложка эллипсометрическим и спектрофотометрическим методами // Поверхность. Рентгеновские, синхротронные и нейтронные исследования. 2000. № 4. С. 59–63.
3. Аюпов Б.М., Девятова С.Ф., Ерксов В.Г., Семенова Л.А. Профили показателей преломления некоторых термических и CVD оксидных пленок на кремнии // Микроэлектроника. 2008. Т. 37. № 3. С. 163–168.
4. Kosinova M.L., Fainer N.I., Rumyantsev Yu.M., Maximovski E.A., Kuznetsov F.A., Terauchi M., Shibata K., Satoh F. Growth of homogeneous and gradient BC_xN_y films by PECVD using trimethylamino borane complex // The Electrochemical Society Proc. V. 2003-08, Chemical Vapor Deposition XVI (CVD-XVI) and EuroCVD 14, 2003. P. 708–715.
5. Лабусов В.А., Путьмаков А.Н., Саушкин М.С., Зарубин И.А., Селюнин Д.О. Многоканальный спектрометр “Колибри-2” и его использование для одновременного определения щелочных и щелочноземельных металлов методом пламенной фотометрии // Зав. лаб. Диагностика материалов. Спец. вып. 2007. Т. 73. С. 35–39.
6. Аюпов Б.М., Лукьянова И.Г. Спектрофотометрическое определение толщин пленок поликристаллического кремния // Электрон. техн. Сер. Материалы. 1981. В. 12(161). С. 59–61.
7. Аюпов Б.М., Козлова Н.А. Обнаружение нарушенного слоя на поверхности кремния посредством метода монохроматической нулевой эллипсометрии // Оптический журнал. 2006. Т. 73. № 3. С. 72–76.
8. Reisman F. Optical thickness measurement of thin transparent films on silicon // J. Appl. Phys. 1965. V. 36. № 12. P. 3804–3807.
9. Шелпакова И.Р., Юделевич И.Г., Аюпов Б.М. Послойный анализ материалов электронной техники. Новосибирск: Наука, 1984. 178 с.
10. Борн М., Вольф Э. Основы оптики. М.: Наука, 1973. 855 с.
11. Holmes D.A. On the calculation of thin film refractive index and thickness by ellipsometry // Appl. Opt. 1967. V. 6. № 1. P. 168–169.
12. Yataka Yoriune. Method for numerical inversion of the ellipsometric equation for transparent films // J. Opt. Soc. Am. 1983. V. 73. № 7. P. 888–891.
13. Ржанов А.В., Свиташев К.К., Семенов А.И., Семенов Л.В., Соколов В.К. Основы эллипсометрии. Новосибирск: Наука, 1979. 424 с.
14. Аюпов Борис, Zherikova Kseniya, Gelfond Nikolai, Morozova Natalia. Optical properties of MOCVD HfO_2 films // Phys. Status Solidi A. 2009. V. 206. № 2. P. 281–286.
15. Аюпов Б.М. Модификация гониометра ГС-5 // ПТЭ. 1993. № 5. С. 185–187.