

# ЕЛІПСОМЕТРИЧНЕ ДОСЛІДЖЕННЯ ОПТИЧНОЇ ОДНОРІДНОСТІ ТОНКИХ ПЛІВОК ХАЛЬКОГЕНІДНОГО СКЛА $As_2S_3$

**В.М. Жихарєв, М.І. Козак, І.Д. Сейковський**

Ужгородський національний університет, 88000, вул. Волошина, 54, Ужгород

В рамках двох підходів – моделі однорідної ізотропної плівки та моделі неоднорідної по товщині плівки, профіль показника заломлення якої апроксимовано трьома ізотропними однорідними шарами, на основі еліпсометричних вимірювань розраховувались оптичні константи тонких плівок склоподібного  $As_2S_3$  різної товщини. Показано, що більш адекватною являється друга модель.

Вивчення природи неоднорідності тонких плівок халькогенідних склоподібних напівпровідників (ХСН) стимульоване, в першу чергу, фундаментальними дослідженнями їх оптичних властивостей. З іншого боку, тонкі плівки ХСН знайшли прикладне застосування – оптичний запис інформації, голографія, ІЧ хвилеводна оптика тощо. Оскільки ХСН в класі некристалічних твердотільних матеріалів характеризуються великою термодинамічною нерівноважністю, то для них важливо застосовувати оперативний неруйнівний метод дослідження оптичних констант, яким беззаперечно являється еліпсометричний метод. Релаксаційні процеси в тонких свіжонапиленних плівках ХСН приводять до того, що їх оптичні константи можуть змінюватися на протязі годин, днів і тільки витримані на протязі місяців або відпалені плівки мають стабільні оптичні константи. Так чи інакше, важко заперечити, що плівка залишається однорідною, оскільки процеси окислення та адсорбції на поверхні, адсорбції на межі з підкладкою однозначно мають приводити до утворення перехідних шарів на верхній та нижній поверхнях плівки. До недавніх часів еліпсометричні вимірювання оптичних констант матеріалів проводилися тільки для найпростіших випадків – об'ємних зразків поглинаючих металів та напівпровідників, прозорих стекол, поверхня яких мала бути відполірована і очищена до високого ступеню. Урахування шорсткості поверхні можна провести введенням ефективного поверхневого ша-

ру, що однак приводило до виникнення труднощів при обчисленнях. Тільки поява потужної комп'ютерної техніки дала змогу використовувати еліпсометрію для дослідження більш складних об'єктів, якими являються неоднорідні поглинаючі тонкоплівкові структури.

Розрахунки оптичних констант по даним еліпсометричним кутам  $\Psi$  та  $\Delta$  при куті падіння променя  $\phi$  проводилися виходячи з основного еліпсометричного рівняння

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

де  $R_p, R_s$  - коефіцієнти відбивання для паралельної та нормальної складової електричного вектора поля відповідно [1].

В першому випадку розглядалася система:

1) середовище (повітря) з показником заломлення  $n_0=1$ ;

2) ізотропна однорідна плівка з комплексним показником заломлення  $N=n-ik$ , де  $n$  – дійсний показник заломлення,  $k$  – коефіцієнт екстинкції плівки товщиною  $h$ ;

3) підкладка з дійсним показником заломлення  $n_1$ .

В другому випадку плівка розглядалася як трьохшарова структура, так що вцілому отримувалася система:

1) середовище (повітря) з показником заломлення  $n_0=1$ ;

2) перехідний шар товщиною  $h_a$  на межі плівка-повітря з дійсним показником

заломлення  $n_a$ ;

3) основний шар плівки товщиною  $h_f$  з комплексним показником заломлення  $N=n-ik$ , де  $n$  – дійсний показник заломлення,  $k$  – коефіцієнт екстинкції;

4) перехідний шар товщиною  $h_s$  на межі плівка-підкладка з дійсним показником заломлення  $n_s$ ;

5) підкладка з дійсним показником заломлення  $n_1$ .

І в першому, і в другому випадку коефіцієнти відбивання р- і s-поляризацій обчислювалися на основі матричного формалізму для багатопарових структур [1,2]. Рівняння (1) розв'язувалось за допомогою розробленої комп'ютерної програми на основі методу багаторазового розв'язування прямої задачі еліпсометрії. При цьому критерієм відхилення пробного розв'язку від шуканого було вибрано середнє квадратичне відхилення значень теоретично розрахованих на основі пробних значень невідомих параметрів поляризаційного кута  $\Psi$  від його експериментального значення  $\Psi^*$ , що спрямовувалось до мінімуму

$$\sigma(\bar{X}) = \left[ \frac{1}{M} \sum_{i=1}^M |\Psi_i(\bar{X}) - \Psi_i^*|^2 \right]^{1/2} \longrightarrow \min$$

де  $\bar{X} = (n, k, h_f, n_a, h_a, n_s, h_s, n_1)$  – вектор параметрів структури, а  $M$  – кількість точок вимірювання.

Вимірювання еліпсометричних кутів проводилося на еліпсометрі ЛЭФ-3М-1 по схемі ПКЗА (поляризатор – компенсатор – зразок – аналізатор) на довжині хвилі гелій-неонового лазера  $\lambda=0.6328$  мкм.

Досліджувалися два зразки плівок  $As_2S_3$  товщиною близько 1 мкм та 4 мкм, напилених у вакуумі термічним методом на підкладки із кварцового скла, при чому проводився контроль товщини в процесі наплення.

Реалізація вибраних двох теоретичних підходів здійснювалася з використанням елементів комп'ютерного моделювання. Оскільки варіювання всіх параметрів структури в найбільш загальній області існування розв'язку призвело б до гіга-

нтської кількості операцій та відповідно непомірного періоду часу розрахунку, то ми вдалися до оптимізації процесу розрахунку. Насамперед програма „проганялася” з великим кроком параметрів з метою локалізації розв'язку, а в подальшому для локалізованої області застосовувався ітеративний процес зі зменшенням кроку. Типова залежність нев'язки, в ролі якої було середньоквадратичне відхилення пробного розв'язку від істинного, приведено на рис. 1.

Значна увага була приділена доведенню стійкості методу. Оскільки до цих пір дискутується питання про граничні можливості методу еліпсометрії, було показано, що метод еліпсометрії являється придатним не тільки для визначення оптичних параметрів надтонких плівок, а й для тонких плівок та плівок, які вже не можна назвати тонкими, оскільки їх товщина суттєво перевищує довжину хвилі.

Оскільки принципові труднощі виникають саме з плівками великої товщини, то ми приводимо ілюстрацію випадку для чотирьохмікронної плівки. Як видно з номограм, оптимальний розв'язок (суцільна крива) ідеально співпадає з експериментальними даними лише біля критичної точки.

Тому розрахунки можна проводити як по всіх експериментальних даних, так і по 1-3-х точках біля критичного кута. Як показав чисельний експеримент, точність обчислень (значення  $\sigma$ ) при цьому не змінюється.

Побудовані номограми підтверджують стійкість методу по всім параметрам структур подібних до тих, що розглядалися. Номограми, приведені на рис. 2 та рис. 3, показують міру відхилення розрахункових та експериментальних значень поляризаційних кутів в залежності від товщини (мається на увазі сумарна товщина плівки  $h = h_f + h_a + h_s$  згідно моделі перехідних шарів), показника заломлення плівки та її коефіцієнта екстинкції.

Треба відмітити, що, на перший погляд, слабе поглинання ( $k=0.0005$ ) не

мало б впливати на вимірювання, однак, як видно з рис. 3, крива при  $k=0$  в суттєвій мірі не співпадає з кривою найкращого наближення. Цей факт демонструє наявність слабого поглинання в плівках даного складу (в об'ємних зразках також [3]),

що може призвести до великої похибки в тих чи інших розрахунках, якщо ним знехтувати, наприклад, в розрахунку постійних поширення направлених мод при дослідженні внутрішнього відбивання.

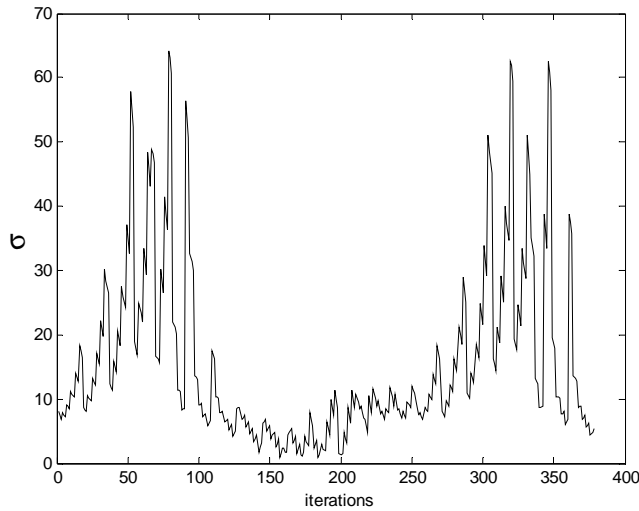


Рис. 1. Типовий розподіл середньоквадратичного відхилення  $\sigma$  в околі розв'язку по кількості ітерацій.

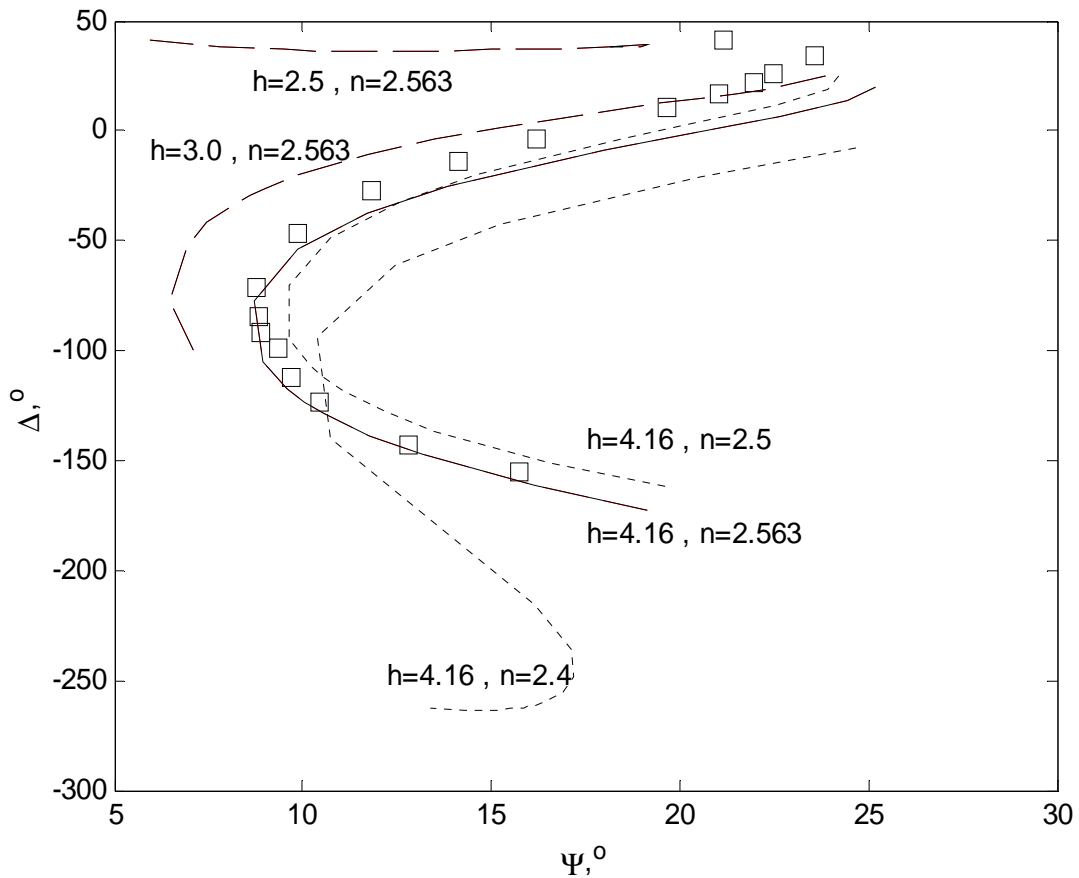


Рис. 2. Номограма  $\Psi$ - $\Delta$  для плівки складу  $As_2S_3$  ( $n=2.563$ ,  $k=5 \cdot 10^{-4}$ ,  $h=4.16$  мкм) на підкладці з плавленого кварца ( $n_1=1.458$ ). Залежність розрахункових  $\Psi$ ,  $\Delta$  від показника заломлення  $n$  та товщини  $h$  плівки.

Таким чином, було показано можливість розрахунку з еліпсометричних даних не тільки оптичної товщини, а й геометричної товщини та оптичних констант, в загальному комплексних, для тонкоплівкової структури на основі ХСН  $As_2S_3$ , що, звичайно, справедливо й для будь-яких слабопоглинаючих на даній довжині хвилі ( $\lambda=0.6328$  мкм) тонко-плівкових структур. Наступним кроком в даній роботі було дослідження власне однорідності в тонких плівках трисульфіду миш'яку.

Як було сказано у вступі, розглядалися дві моделі – у припущенні однорідності плівки та у припущенні неоднорідності, що в першому наближенні апроксимувалася двома перехідними шарами на границях плівки з повітрям і підкладкою. Проведені розрахунки, результати яких приведені на рис. 4-5 та в таблиці, підтвердили сподівання, що в рамках другої моделі шукані параметри структури будуть краще узгоджуватися з експериментальними вимірюваннями.

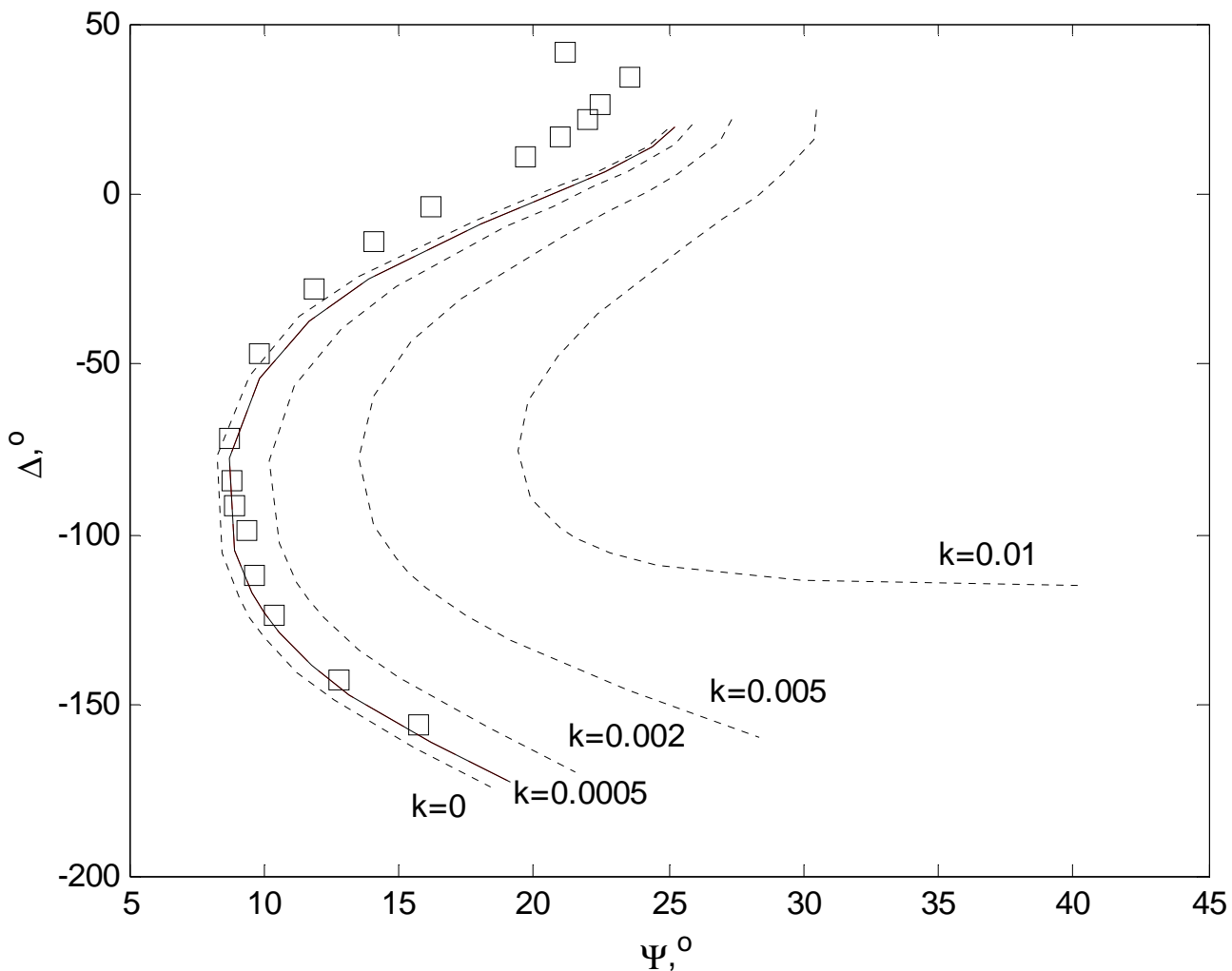


Рис. 3. Номограма  $\Psi$ - $\Delta$  для плівки складу  $As_2S_3$  ( $n=2.563$ ,  $k=5 \cdot 10^{-4}$ ,  $h=4.16$  мкм) на підкладці з плавленого кварца ( $n_1=1.458$ ). Залежність розрахункових  $\Psi$ ,  $\Delta$  від коефіцієнта екстинкції плівки  $k$ .

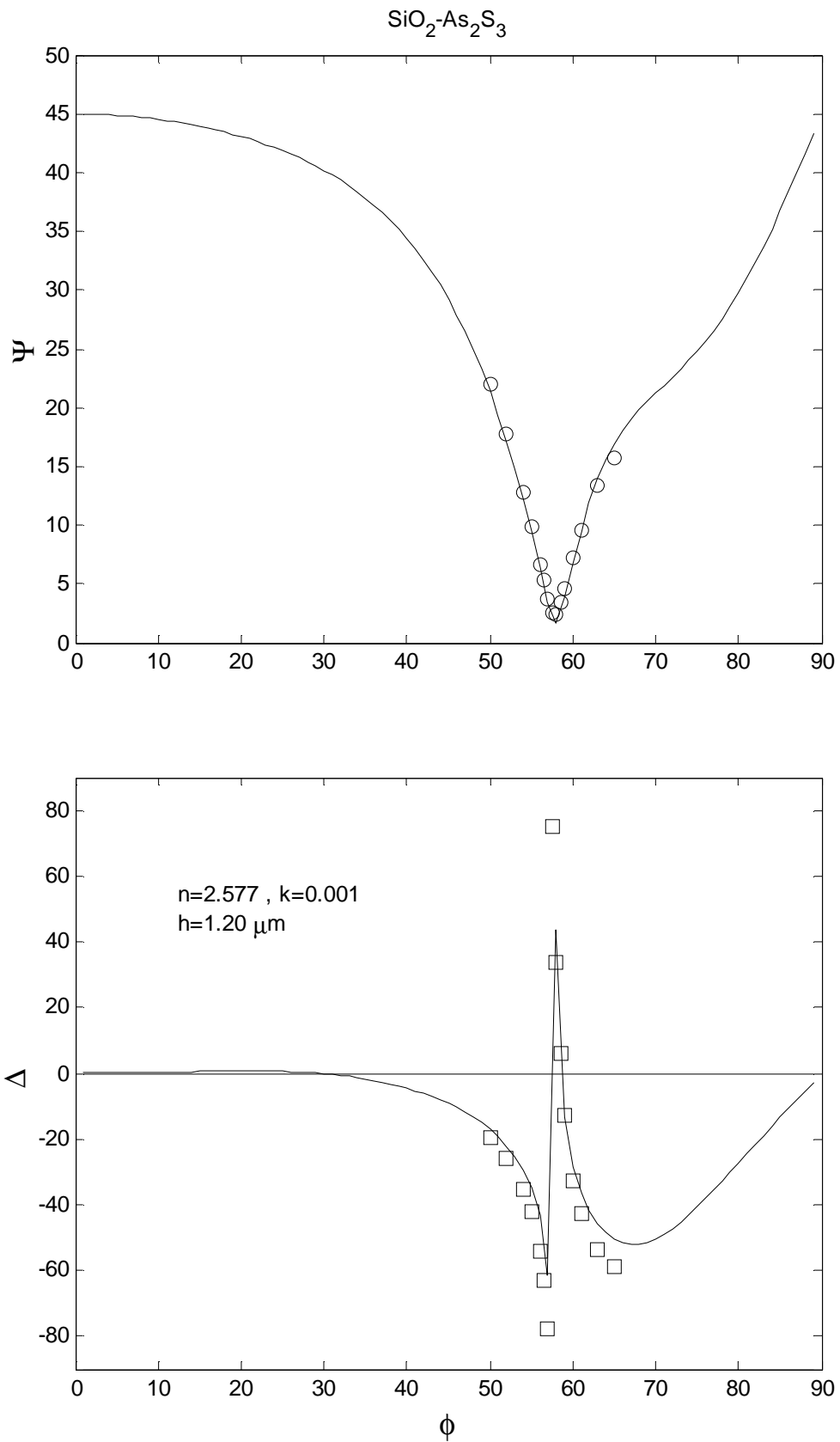


Рис. 4. Залежність еліпсометричних кутів  $\Psi$  і  $\Delta$  від кута падіння променя  $\phi$  (в градусах) одномік-  
ронної плівки  $\text{As}_2\text{S}_3$  на підкладці з плавненого кварца ( $n_f=1.46$ ).

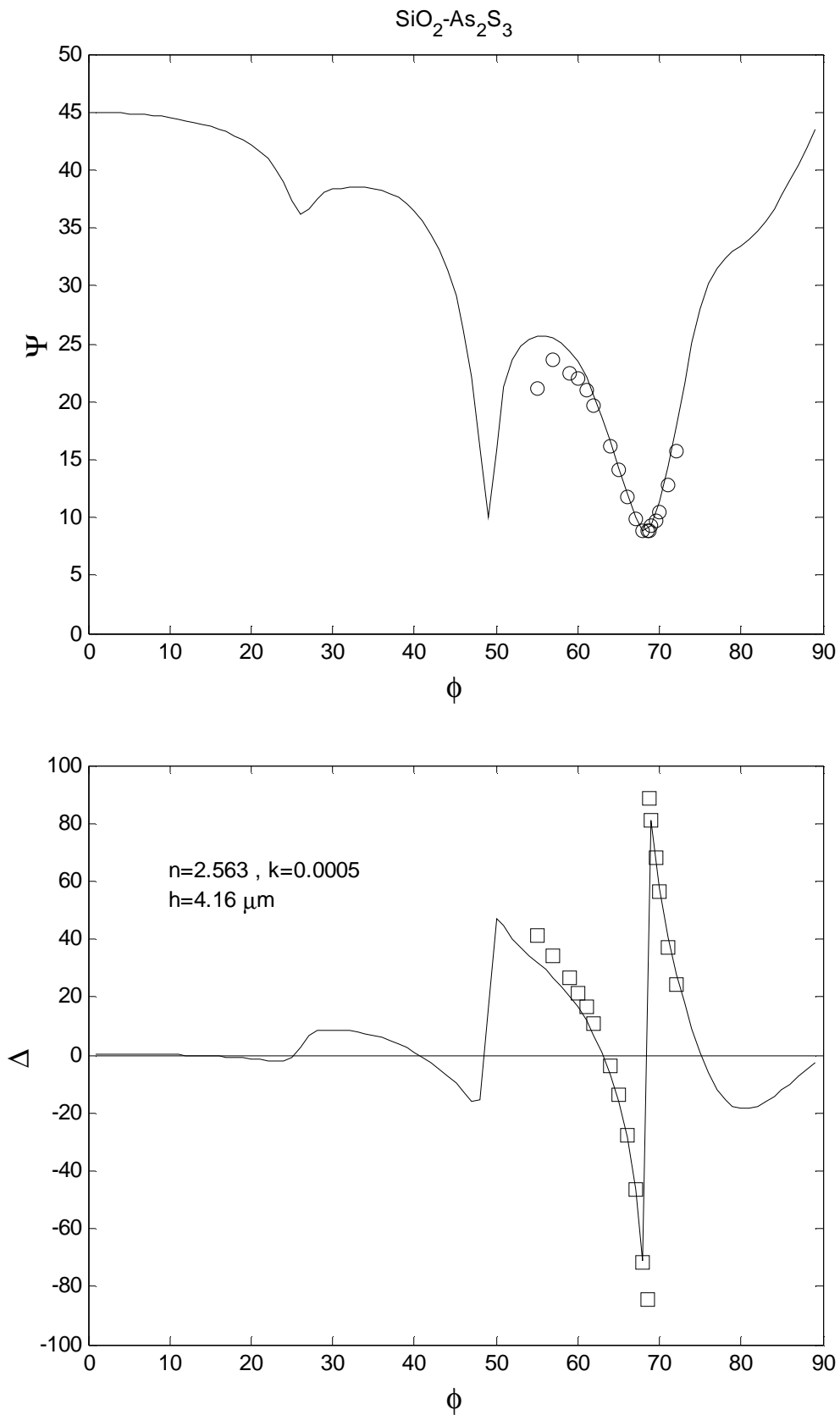


Рис. 5. Залежність еліпсометричних кутів  $\Psi$  і  $\Delta$  від кута падіння променя  $\phi$  (в градусах) чотирьохмікронної плівки  $\text{As}_2\text{S}_3$  на підкладці з плавленого кварца ( $n_1=1.46$ ).

Таблиця.

	<i>модель однорідної плівки</i>				<i>модель перехідних шарів</i>					
	$n$	$k$	$h, \text{ мкм}$	$\sigma$	$n$	$k$	$n_a$	$n_s$	$h, \text{ мкм}$	$\sigma$
<i>зразок1</i>	2.568	0	1.20	1.18	2.577	0.0010	1.2	2.5	1.20	0.06
<i>зразок2</i>	2.313	0	4.11	0.23	2.563	0.0005	1.2	2.5	4.16	0.15

Товщина перехідного шару на обидвох границях плівок складала  $h_a=h_s=0.025 \text{ мкм}$ , а показники заломлення –  $n_a=1.2$ ,  $n_s=2.5$ , причому для обидвох зразків. Така універсальність може показатися підозрілою, однак вона пояснюється. Як виявилось, варіація цих параметрів не дає суттєвого покращення по  $\sigma$ , оскільки його значення в цьому випадку уже, напевно, співрозмірне з похибкою експерименту. З фізичних міркувань значення показника заломлення шару на межі з повітрям задовільне, оскільки відомо, що такого роду шари мають показник заломлення близько 1.3 як дуже пористі структури.

Оскільки для одномікронної плівки одержаний показник заломлення в рамках моделі перехідних шарів співпадає з даними роботи [4], в якій вимірювання проводилися на сучасному спектроскопічно-

му еліпсометрі UVISEL, з точністю  $\pm 0.002$ , то з великою мірою вірогідності можна припустити достовірність результатів даної роботи.

Що стосується чотирьохмікронної плівки, то, на жаль, ми не можемо стверджувати на даний час, яка причина відхилення в показниках заломлення даної і одномікронної плівок майже в 0.015, оскільки дані два зразки виготовлялися в різних технологічних умовах. Однак очевидно, що розрахунки в рамках моделі однорідної плівки для зразка 2 дають хибне значення показника заломлення (2.313), а для зразка 1 відхилення значень для двох моделей становить близько 0.01, що є дуже суттєво.

На завершення висловлюємо подяку н.с. Трунову М.Л. за підтримку і корисні обговорення при підготовці даної роботи.

### Література

1. М.Борн, Э.Вольф, Основы оптики (Наука, Москва, 1973).
2. Р.Аззам, Н.Башара, Эллипсометрия и поляризованный свет (Мир, Москва, 1981).
3. В.М. Жихарев, М.І. Козак, М.Ю.

- Бобик, І.Д. Сейковський, Вісник Ужгородського університету. Сер. Фізика, в. 15, 2004.
4. I. Ohlidal, D. Franta, M. Frumar, J. Jedelsky, J. Omasta, JOAM, 2004.

# **ELLIPSOMETRIC STUDIES OF HOMOGENEOUSLY OF AS<sub>2</sub>S<sub>3</sub> CHALCOGENID GLASS THIN FILMS**

**V.M. Zhikharev, M.I. Kozak, I.D. Seijkovskij**

Uzhgorod national university , Voloshyn st., 54, Uzhgorod, 88000

In the framework of two approaches – a uniform isotropic film model and a variable thickness film model optical constants of glassy As<sub>2</sub>S<sub>3</sub> thin films of different thickness were calculated on the basis of ellipsometric measurements. The second method is shown to be more adequate.