Наносистеми, наноматеріали, нанотехнології
Nanosystems, Nanomaterials, Nanotechnologies
2009, т. 7, № 2, сс. 421–431

© 2009 ІМФ (Інститут металофізики
ім. Г. В. Курдюмова НАН України)
Надруковано в Україні.
Фотокопіювання дозволено
тільки відповідно до ліцензії

PACS numbers: 07.60.Hv, 42.25.Gy, 68.35.bg, 68.55.J-, 68.65.Ac, 78.67.Pt, 81.70.Fy

Влияние структуры поликремниевых пленок на оптические характеристики отраженного света

О. И. Барчук, К. С. Биленко, А. А. Голобородько, В. Н. Курашов,
Е. А. Оберемок, С. Н. Савенков

Киевский национальный университет имени Тараса Шевченко,
ул. Владимирская, 60,
01033 Киев, Украина

Рассмотрены оптические характеристики сложных многослойных систем на основе кремния. Исследовано влияние структуры поликристаллических пленок с наноразмерными особенностями на характер угловых зависимостей коэффициентов отражения R_p и R_s. Показано, что для интерпретации полученных экспериментальных результатов во многих случаях можно использовать модель многократного рассеяния для слоистых структур. При расчетах необходимо учитывать поглощение в таких средах и усреднение по апертуре фотодетектора. Компьютерное моделирование показало, что наличие на подложке слоя окисла существенно меняет характер зависимостей для коэффициентов отражения. Наличие дополнительных экстремумов в вышеуказанных зависимостях связано с существованием интерферирующих волн, отраженных от границ с различными показателями преломления для системы воздух–поликристаллическая пленка–окисел–подложка.

Розглянуто оптичні характеристики складних багатошарових систем на основі кремнію. Досліджено вплив структури полікристалічних плівок з нанорозмірними особливостями на характер кутових залежностей коефіцієнтів відбивання R_p и R_s. Показано, що для інтерпретації одержаних експериментальних даних в багатьох випадках доцільно використовувати модель багаторазового розсіяння для шаруватих структур. При розрахунках необхідно враховувати вбирання в таких середовищах і усереднення за апертурою фотодетектора. Комп'ютерне моделювання показало, що наявність на підложжі шару окису якісно змінює характер залежностей для коефіцієнтів відбивання. Наявність додаткових екстремумів у вищезазначених залежностях пов'язано з існуванням інтерферівних хвиль, що відбилися від межі з різними показниками заломлення для системи повітря–полікристалічна плівка–окис–підложжя.

Optical characteristics of complex multilayer systems based on Si are studied.

Influence of polysilicon-films structure with nanoscale features on behaviour of angular dependences for reflection coefficients, R_p and R_s, are investigated. As shown, the multiple-scattering model for multilayered structure could be used for interpretation of obtained experimental results. Absorption in such media and averaging over photodetector aperture should be taken into account at calculation. As shown in computer simulation, the presence of SiO_2 layer on a substrate essentially changes behaviour of reflection-coefficients dependences. Presence of additional extremums on dependences is conditioned by the presence of interfering waves, which are reflected from boundaries with different refractive indexes for the system 'air–polysilicon film–oxide–silicon–substrate'.

Ключевые слова: пленки поликремния, структура, границы раздела, коэффициент отражения, Мюллер-поляриметрия.

(Получено 18 декабря 2007 г.)

1. ВВЕДЕНИЕ

Для диагностики наноструктурированных пленок и покрытий все чаще используются оптические методики, несомненным преимуществом которых для таких объектов является измерение макроскопических характеристик, определяющих свойства вещества в целом (не зная точных параметров: состава, структуры, количества слоев и т.п.). Информативными для этого класса объектов можно считать спектроскопию [1], обычную и спектральную эллипсометрию [2, 3], многоугловое рассеяние [4], статистические методы, основанные на анализе дифракционных картин отраженного света [4–5]. В основу этих методов положены явления взаимодействия излучения с веществом, и различие в способности отражать или поглощать свет для различных веществ вытекает из самой их природы. Характер взаимодействия электромагнитного излучения с диэлектриками, полупроводниками, металлами, а также с магнитными и немагнитными материалами, определяется величинами ε, μ и σ (диэлектрическая, магнитная проницаемости и проводимость, соответственно), или оптическими постоянными r, n и k (коэффициентами отражения, преломления и поглощения, соответственно). Для сплошных сред эти методики хорошо развиты и широко используются при определении оптических параметров, давая высокую точность измерений [6–8]. Наноструктурированные материалы характеризуются другими диэлектрическими и магнитными эффективными постоянными ε_{eff} и μ_{eff}, а соответственно, и другими n_{eff} и k_{eff}, что и позволяет надеяться на возможность диагностики структур с характерными размерами порядка нанометров, то есть на порядок меньше длины волны зондирующего излучения.

Еще одно преимущество оптических методов заключается в их

гибкости по отношению к объекту исследования, позволяя совмещать несколько методик одновременно или переходить от одной к другой, что важно при проведении эксперимента. Оптическую схему легко перестраивать как с точки зрения зондирующей части, создавая пучки требуемой конфигурации, необходимой апертуры и поляризации, так и с точки зрения приемной аппаратуры, используя при этом цифровые камеры, фотодиоды, либо другие сенсорные устройства с требуемой обработкой получаемых данных. Расположение исследуемых образцов также не является критичным, и их крепление может быть сконфигурировано способом, удобным в экспериментальном плане. Перечисленные выше возможности оптических методик пригодны для измерения, как усредненных величин, так и локальных характеристик. В первом случае используется широкий освещающий пучок и измерения интегральных макроскопических величин вещества в целом. Во втором — предполагается использование сфокусированного зондирующего излучения в точку. Сканирование таким пучком поверхности образца обеспечит поиск особых точек с аномальными свойствами, поскольку электромагнитная оптическая волна, взаимодействуя со структурой в аномальной точке, будет, очевидно, иметь другие характеристики, определяемые отличиями в электронных структурах наноструктурированных объектов. Эти рассуждения также свидетельствуют в пользу применения оптических методик.

Поликристаллические пленки кремния и многослойные структуры на их основе составляют основу современной микроэлектроники, и их исследование приобретает особое значение при переходе к нанотехнологиям [7]. Поликремниевые пленки существуют в разных морфологических модификациях [9, 10], причем характерные размеры структур при этом становятся порядка нанометров и в зависимости от этого их свойства, в частности оптические, могут иметь некоторые особенности.

Таким образом, исследования, связанные с выявлением особенностей оптических характеристик данных пленок для различных структурных модификаций, являются актуальными и имеют важное прикладное значение для создания с помощью современных технологий материалов с оптимальными свойствами.

2. ОБЪЕКТ ИССЛЕДОВАНИЯ. ТЕОРЕТИЧЕСКИЕ СООТНОШЕНИЯ И ЧИСЛЕННОЕ МОДЕЛИРОВАНИЕ

Объектами исследования были образцы, которые представляли собой подложку из монокристаллического кремния (100) со слоем окисла SiO_2 толщиной ~ 0,1 мкм, на который были нанесены поликристаллические пленки. Образцы различались толщинами нанесенных пленок (0,5–2 мкм), особенностями их структуры (равноос-

ная, дендритная или волокнистая), размерами зерен (0,3–0,7 мкм), которые были характерны для той или иной структуры и неоднородностями поверхности (7 нм–0,5 мкм), которые были обусловлены характерными размерами структур. Детально о получении различных структур пленок и измерении их характерных размеров можно узнать из работ [9, 10].

Напомним, что для диэлектриков и металлов оптические методы дают надежное измерение толщины пленок на поверхностях и показателей преломления [8], при этом соотношения при нормальном падении, скользящем угле и при угле Брюстера (а для металлов — при главном угле) имеют аналитический вид. Существующие при этом соотношения справедливы и для металлов, и для диэлектриков при введении комплексного показателя преломления, где мнимая часть учитывает поглощение среды. При исследованиях полупроводниковых материалов необходимо учитывать, что вещество может вести себя и как металл (наличие свободных зарядов), и как диэлектрик, поэтому для общности описания их также необходимо характеризовать комплексным показателем преломления.

Конечно же, прямое использование аналитических выражений для реально получаемых в эксперименте макроскопических величин не может быть адекватным и требует методов численного моделирования. Прежде всего, это объясняется тем, что при получении аналитических выражений ограничиваются лучевым приближением. Далее используя соотношения Снеллиуса и условия на границе раздела сред, получаем выражения для коэффициентов отражения в ортогональных поляризациях. Понятно, что идеализированные понятия геометрической оптики, когда луч бесконечно тонкий и точка на границе раздела сред бесконечно малого размера, не соответствуют действительности. Реальный пучок имеет определенные размеры, то есть является уже совокупностью геометрических лучей, а после отражения от границы раздела в зависимости от координаты на исследуемой поверхности (наноструктурированной), может иметь различные направления векторов распространяющихся лучей (векторов поляризации), что только после усреднения по апертуре фотодетектора будет соответствовать экспериментально получаемым зависимостям.

Таким образом, надежность получаемых параметров среды при решении обратной задачи (нахождении параметров среды по экспериментально полученным оптическим характеристикам) зависит, во-первых, от выбора адекватной модели среды и взаимодействия когерентного оптического излучения со средой, во-вторых, от точности измерения макроскопических величин, а также, от их интерпретации.

В существующих на данный момент работах [1, 2, 4] хорошо себя зарекомендовала модель многослойной структуры с различными

толщинами и эффективными показателями преломления для описания сред подобного типа, которую мы взяли за основу, дополнительно вводя поглощение среды [11].

Для описания образцов многослойная структура должна включать в себя границы раздела с различными показателями преломления n_1, n_2, n_3, n_4 соответствующие следующим средам: воздух, поликремниевая пленка, SiO_2, массивная подложка монокристаллического Si(100). За счет разных показателей преломления возможно отражение и преломление оптической волны на каждой из границ. Учет шероховатости поверхности и промежуточных слоев может уточнить модель и получить еще 3 границы с эффективными показателями преломления, которые вычисляются как среднее взвешенное показателей преломления смежных слоев. Что касается слоя поликремниевой пленки, его тоже необходимо характеризовать эффективным показателем преломления, который соответствует той или другой морфологии пленки и отличается от коэффициента преломления для монокристаллического Si. Конечно же, каждый слой такой многослойной структуры имеет определенную толщину, проходя которую часть преломленной волны поглощается, другая — проходит в следующий слой, а часть — отражается от границы и возвращается в тот же самый слой. Учитывая суммарный вклад от каждой границы раздела для перечисленных волн, можно получить соотношение для суммарной интенсивности света, отраженного от поверхности образца.

Таким образом, на суммарный результат будут влиять коэффициенты преломления и поглощения, длина оптического пути, фазовые соотношения между ними, которые определяют условия интерференции.

С учетом интерференционных явлений после прохождения каждой границы (рис. 1), поглощения в каждом слое, а также усреднения по апертуре на основании электромагнитной теории света, нами получены приведенные ниже выражения для комплексных амплитуд отраженной и преломленной волн в терминах макроскопических оптических характеристик таких структур.

В случае использования оптического излучения от диэлектрической и магнитной проницаемости можно перейти к описанию взаимодействия света с такой структурой с помощью комплексного показателя преломления

$$n = n_{\mathrm{Re}} + jn_{\mathrm{Im}}, \tag{1}$$

где n_{Re}, n_{Im} — показатели преломления и поглощения, соответственно.

С использованием соотношений Френеля амплитуды отраженных s и p компонент могут быть записаны в виде:

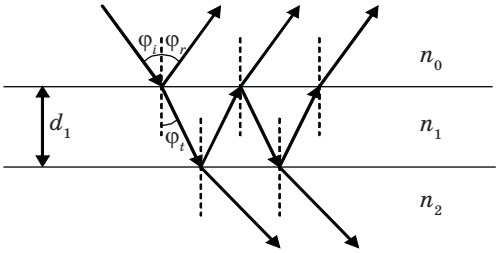

Рис. 1. Схематические изображения отражения света от многослойной структуры.

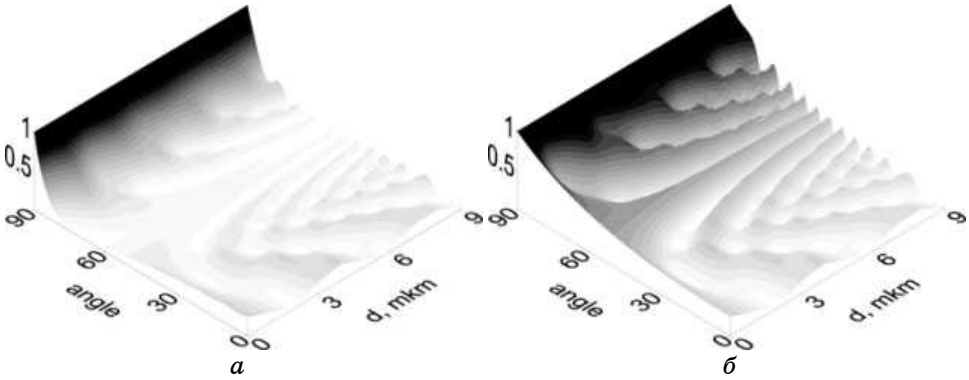

Рис. 2. Зависимости коэффициентов отражения p (а) и s (б) компонент от толщины промежутка SiO_2 для границы воздух–SiO_2–Si.

$$E_p^N = \left(r_p^{0,1} + \sum_{i=1}^{N} \prod_{k=1}^{i} \left(t_p^{k-1,k} e^{j\frac{2\pi d_k}{\lambda \cos\varphi_{t_k}}} \right)^2 r_p^{i-1,i} \right) E_p^0 = R_p E_p^0,$$
$$E_s^N = \left(r_s^{0,1} + \sum_{i=1}^{N} \prod_{k=1}^{i} \left(t_s^{k-1,k} e^{j\frac{2\pi d_k}{\lambda \cos\varphi_{t_k}}} \right)^2 r_s^{i-1,i} \right) E_0 = R_s E_s^0, \quad (2)$$

где $r^{i-1,i}$ и $t^{i-1,i}$ — комплексные коэффициенты отражения и пропускания на границе между $(i-1)$- и i-тым слоями; λ — длина волны; d_i — толщина i-того слоя; φ_t — угол падения на границу $i-1, i$; R — приведенный комплексный коэффициент отражения, который может быть записан в следующем виде:

$$R = r^{0,1} + \sum_{i=1}^{N} \prod_{k=1}^{i} \left(t^{k-1,k} e^{j\frac{2\pi d_k}{\lambda \cos\varphi_{t_k}}} \right)^2 r^{i-1,i}. \quad (3)$$

Видно, что в приведенный коэффициент отражения входит фазовый множитель, который отвечает набегу фазы при распростране-

нии волны в многослойной среде. Это, в свою очередь, доказывает возможность появления интерференционных явлений и проявляется в виде осцилляций угловых зависимостей коэффициента отражения. Примеры таких осцилляций показаны на рис. 2. Естественно, при увеличении толщины слоя окисла количество осцилляций растет. Добавочный слой поликремния на поверхности окисла может повлиять на ход зависимостей и сделать их непредсказуемыми. При этом можно ожидать, что каждый набор угловых зависимостей однозначно определяется типом многослойной структуры.

Угловую зависимость эллипсометрического угла $\Delta = R_p / R_s$ можно использовать для определения ширины каждого из слоев, поскольку ширина d_i фигурирует лишь в экспоненте (3).

3. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ ИССЛЕДОВАНИЯ И ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ

Для измерения ортогональных компонент R_p и R_s в реальном эксперименте был использован метод, использующий временную модуляцию поляризации, что позволяло варьировать азимут и фазовый сдвиг эллипса поляризации в зондирующем пучке. В общем случае устройство позволяет измерять элементы матрицы Мюллера и получать полную информацию о поляризационной структуре исследуемого излучения (рис. 3) [12, 13]. Напомним, что матрица Мюллера связывает между собой состояния поляризации излучения, представленного вектором Стокса S до и после взаимодействия с исследуемым объектом:

$$\mathbf{S}^{\text{out}} = \mathbf{M} \cdot \mathbf{S}^{\text{in}}, \tag{4}$$

$$\mathbf{S}^{\text{in(out)}} = \begin{bmatrix} I \\ IP\cos(2\theta)\cos(2\varepsilon) \\ IP\sin(2\theta)\cos(2\varepsilon) \\ IP\sin(2\varepsilon) \end{bmatrix}; \ \mathbf{M} = \begin{bmatrix} m_{11} & m_{12} & m_{13} & m_{14} \\ m_{21} & m_{22} & m_{23} & m_{24} \\ m_{31} & m_{32} & m_{33} & m_{34} \\ m_{41} & m_{42} & m_{43} & m_{44} \end{bmatrix}, \tag{5}$$

где $\mathbf{S}^{\text{in(out)}}$ — вектора Стокса до и после взаимодействия со средой; I — интенсивность излучения; P — степень поляризации; θ, ε — азимут и угол эллиптичности эллипса поляризации. Естественно, можно было ограничиться измерением R_p и R_s, но нас интересовали все поляризационные характеристики, на которые могли бы повлиять морфологические особенности исследуемых образцов.

Схема используемого поляриметра (рис. 3) состоит из двух каналов: зондирующего и приемного. Канал зондирования, в свою очередь, состоит из следующих элементов: источника электромагнитного излучения с изотропной поляризацией (ОКГ), идеального по-

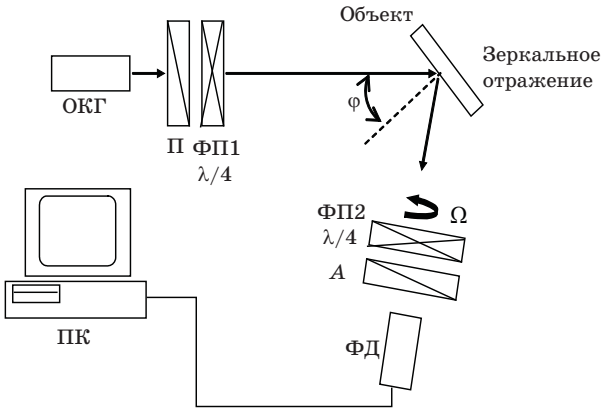

Рис. 3. Блок-схема установки для исследований поляризационных характеристик. ОКГ — источник излучения (He–Ne-лазер, $\lambda = 0{,}63$ мкм); П, ФП1 — поляризатор и четвертьволновая фазовая пластинка (образуют управляемый генератор поляризации излучения); О — объект исследования; *A*, ФП2 — анализатор и фазовая пластинка; ФД — фотодетектор, ПК — персональный компьютер.

ляризатора (П) и пластинки $\lambda/4$ (ФП1) с контролируемым азимутальным углом поворота. Приемный канал состоит из пластинки $\lambda/4$ (ФП2), которая постоянно вращается, анализатора (А) и фотодетектора (ФД). Фурье-преобразование полученного сигнала дает амплитуды определенных гармоник, которые пропорциональны компонентам вектора Стокса. Ошибка определения элементов матрицы Мюллера составляла 2%.

Измерение матриц Мюллера проводилось для зеркального отражения лазерного излучения с апертурой освещающего пучка 2 мм при различных углах падения на исследуемый образец. Предварительно была проведена калибровка установки на сплошных средах с известными показателями преломления (массивных образцах кремния и стекла) и показала хорошее совпадение экспериментально полученных данных с результатами численного моделирования. После калибровочных измерений на тестовом образце с нанесенной пленкой аморфного кремния оказалось, что существенно отличающимися от соответствующих элементов матрицы Мюллера для подложки кремния были элементы m_{11}, m_{34} (m_{43}). Величина элемента m_{11} отображает часть отраженного света при единичной интенсивности входного пучка, что соответствует в определенном пересчете коэффициентам отражения при углах близких к нормальному падению. Элементы m_{34} (m_{43}) отображают изменение эллиптичности поляризации (т.е. различие коэффициентов передачи для ортогональных компонент электрического вектора), что также может быть отражено в величинах R_p и R_s. Единственной величиной, которую мы теряем,

измеряя R_p и R_s, является начальная величина фазового сдвига между компонентами, вносимая фазовой пластинкой.

Результаты измерений и расчетов представлены на рис. 4, *а*, *б*, *в*, *г*) для разных типов поликристаллических пленок кремния на кремнии.

Аморфный кремний является изотропным веществом. Поэтому можно предположить, что образованные пленки на одинаковой подложке не будут существенно отличаться с точки зрения поляризационных характеристик. Ход зависимостей коэффициентов отражения для пленки аморфного кремния (см. рис. 4, *а*) не отличается от аналогичных, полученных для сплошных сред, имея при этом

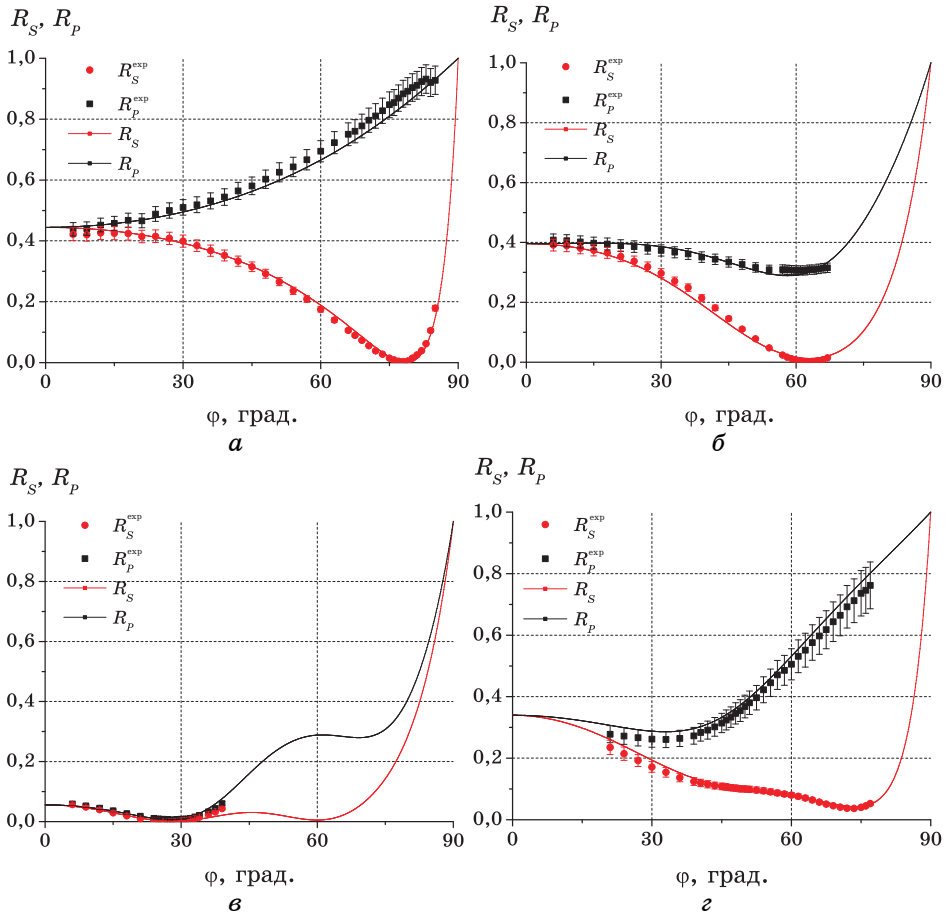

Рис. 4. Угловые зависимости коэффициентов отражения *s* и *p* компонент для структуры: воздух–poli-Si пленки различной структуры и толщины *d* (*а*–*г*) — SiO_2(толщина 0,1 мкм) — кремниевая подложка. (*а* — аморфная пленка $d = 0{,}7$ мкм; *б* — равноосная пленка $d = 0{,}75$ мкм; *в* — равноосная пленка $d = 0{,}2$ мкм; *г* — волокнистая пленка $d = 2$ мкм)

другие параметры (R_p и R_s при нормальном угле падения, и смещение положения угла Брюстера).

На рисунке 4, *б*, *в*, *г* аналогичные зависимости приведены для поликремниевых пленок с равноосными структурами, но различной толщины рис. 4, *б*, *в*, и для волокнистой пленки рис. 4, *г*. Для дендритной пленки зависимости аналогичны равноосным структурам с мелким размером зерен, и здесь не приводятся. Характер зависимостей существенно отличается во всех случаях. Как видно из рис. 4 результаты численного моделирования хорошо совпадают с экспериментальными зависимостями для случаев рис. 4, *а*, *г* и согласуются только на малых углах падения рис. 4, *в*, *г*, что свидетельствует о необходимости учета дополнительных слоев.

4. ВЫВОДЫ

Влияние структур поликремниевых пленок на поляризационные характеристики отраженного от их поверхности когерентного излучения существенно, и дает дополнительную информацию (хотя и косвенно) об электронных взаимодействиях, определяющих эту структуру. Оптические исследования являются информативным направлением в применении к сложным многослойным структурам на основе кремния.

Предварительные результаты компьютерного моделирования показали во многих случаях совпадение экспериментальных данных с рассчитанными для различных структур на основе кремния. Анализ данных показал, что зондирование в одном направлении для разных объектов не может однозначно характеризовать ту или иную структуру поликремниевой пленки. Характер угловых зависимостей отличается для сплошных сред и сред с нанесением пленок разной структуры.

Получение более детальной количественной информации о толщинах пленок, их структуре, ее характерных размерах, оценки пористости требует детальных тестовых исследований с привлечением стандартизованных объектов.

Развитие вышеизложенной методики в применении к композитным материалам можно считать перспективным для получения макроскопических характеристик, описывающих свойства исследуемых материалов в целом.

ЦИТИРОВАННАЯ ЛИТЕРАТУРА

1. Л. П. Кузнецова, А. И. Ефимова, Л. А. Осминкина, Л. А. Головань, В. Ю. Тимошенко, П. К. Кашкаров, *ФТТ*, **44**, № 5: 780 (2002).
2. А. И. Беляева, А. А. Галуза, С. Н. Коломиец, *Физика и техника полупроводников*, **38**, № 9: 1050 (2004).

3. S. C. Russev, J. P. Drolet, and D. Ducharme, *Appl. Opt.*, **37**, No. 25: 5912 (1998).
4. J. J. Chang, T. E. Hsieh, Y. L. Wang, W. T. Tseng, C. P. Liu, and C. Y. Lan, *Thin Solid Films*, **472**: 164 (2005).
5. V. A. Sterligov, Yu. V. Subbota, Yu. Shirshov, L. P. Pochekaylova, Eu. F. Venger, R. V. Konakova, and I. Yu. Ilyin, *Appl. Opt.*, **38**, No. 12: 2666 (1999).
6. М. Борн, Э. Вольф, *Основы оптики* (Москва: Мир: 1970).
7. Д. И. Биленко, В. П. Полянская, М. А. Гецьман, Д. А. Горин, А. А. Невешкин, А. М. Ященок, *ЖТФ*, **75**, № 6: 69 (2005).
8. D. Beaglehol, *J. Opt. Soc. Am. A*, **8**, No. 2: 311 (1991).
9. N. G. Nakhodkin and T. V. Rodionova, *Phys. Stat. Sol. (a)*, **123**, No. 2: 431 (1991).
10. Н. Г. Находкин, Н. П. Кулиш, П. М. Литвин, Т. В. Родионова, *Наносистемы, наноматериалы, нанотехнологии*, **2**, № 3: 793 (2004).
11. О. І. Барчук, Є. А. Оберемок, Т. В. Родіонова, С. М. Савенков, *Київ. унів. Радіофізика*, **2**: 211 (2007).
12. S. N. Savenkov, *Optical Engineering*, **41**, No. 5: 965 (2002).
13. В. В. Марьенко, С. Н. Савенков, *Оптика и спектроскопия*, **76**, № 1: 102 (1994).