

УДК 535.32:621.378

ИЗМЕРЕНИЕ СПЕКТРОВ ПОГЛОЩЕНИЯ ТОНКИХ ПЛЕНОК ВОЛНОВОДНЫМ МЕТОДОМ

© 2016 г. А. В. Хомченко

Белорусско-Российский университет, Могилев, Беларусь

E-mail: avkh@mogilev.by

Рассмотрен волноводный метод измерения спектров поглощения тонких пленок в области их прозрачности. Погрешность измерения поглощения пленки толщиной ~ 0.1 мкм не превышала 5% при значениях коэффициента поглощения менее 50 см^{-1} . Обсуждаются возможности и ограничения метода.

DOI: 10.7868/S0367676516040189

ВВЕДЕНИЕ

Широкое применение тонкопленочных структур в микро- и оптоэлектронике стимулирует исследования по разработке методов измерения их оптических параметров. Одним из эффективных методов такого контроля наряду с эллипсометрией [1] является волноводная спектроскопия [2, 3]. Первые попытки определения спектрального коэффициента поглощения пленок были предприняты в рамках спектроскопии поверхностных электромагнитных волн [4], которая позволяла достаточно эффективно исследовать спектры мономолекулярных слоев и естественных окисных слоев на поверхности металлов в инфракрасной области спектра. В видимом диапазоне для спектроскопии поглощающих пленок было предложено использовать спектроскопию волноводных мод [5, 6], когда исследуемые пленки располагались на поверхности волновода, а регистрируемое дополнительное ослабление света в волноводе определялось его поглощением в пленке вследствие проникновения в нее поля волноводной моды. Показана возможность определения спектрального коэффициента поглощения тонких пленок в [7] на основе измерения действительной h' и мнимой частей h'' постоянной распространения h волноводных мод с применением двухпризменной схемы. В [8, 9] предложены новые волноводные методы одновременного измерения показателя преломления, коэффициента поглощения и толщины тонких пленок, основанные на резонансном возбуждении волноводных мод в пленке. В последнее время появился ряд работ, расширяющих возможности волноводного метода [10–13]. В [14] предложен метод волноводной спектроскопии, позволяющий исследовать свойства тонких пленок в некогерентном свете.

В настоящей работе изложены основные принципы и техника эксперимента измерения спектральных характеристик на основе пространственной фурье-спектроскопии волноводных мод [15]. Обсуждаются возможности и особенности измерения коэффициента поглощения (экстинкции) k , показателя преломления n , толщины пленки d и исследования спектральных свойств тонких пленок в видимом диапазоне спектра.

МЕТОДИКА ЭКСПЕРИМЕНТА

Методы волноводной спектроскопии основаны на регистрации углового положения темной m -линии, соответствующей возбуждению определенной волноводной моды и имеющей характерное распределение интенсивности, параметры которого связаны со свойствами пленки [2]. Такое распределение можно зарегистрировать при использовании в соответствующей схеме (рис. 1) матричного фотоприемника. Приемник расположен в фокальной плоскости объектива, через который проходит отраженный от призменного элемента связи световой пучок и регистрирует спектр интенсивности светового пучка, который пропорционален квадрату модуля пространственного фурье-спектра $I(\varphi)$ светового пучка, отраженного от призменного устройства возбуждения мод. Такой подход получил название пространственной фурье-спектроскопии волноводных мод [15].

При возбуждении волноводной моды часть светового пучка туннелирует в пленку, распространяется вдоль нее, переизлучается в призму, и в фокальной плоскости объектива регистрируется картина интерференции переизлученного из пленки и отраженного от основания призмы пучков. Анализ такой картины и был использован



при определении параметров пленки. В данном случае длина взаимодействия определяется не размером пучка на основании призмы, а длиной трека волноводной моды (например, при потерях $\sim 10 \text{ см}^{-1}$ эта длина $\sim 1 \text{ см}$), что и определяет высокую чувствительность метода.

Типичный фурье-спектр волноводной моды (в направлении, перпендикулярном наблюдаемой m -линии) представлен на вставке рис. 1. В качестве зондирующего излучения использовано излучение лампы накаливания, прошедшее через монохроматор. Измерение углового спектра интенсивности отраженного светового пучка $I(\varphi)$ осуществляется с помощью линейки фотоприемников 12, ось вращения которой сопряжена с осью поворотного столика 10 гониометра. Угол φ отсчитывается от нормали к выходной грани призмного элемента связи. В приведенной схеме используется фотодиодная линейка с размером ячейки 20 мкм, связанная с аналого-цифровым преобразователем. После цифровой обработки сигнал поступает в оперативную память компьютера. Абсолютная погрешность измерения угла возбуждения моды составляет $3 \cdot 10^{-5}$ радиана интенсивности светового потока – 0.1%. Компьютерная программа, основанная на алгоритме, изложенном в [8], позволяет обрабатывать зарегистрированное распределение и находить действительную и мнимую части постоянной распространения моды. При исследовании пленочного волновода подстановка значений h для двух поддерживаемых им мод любого типа в соответствующие дисперсионные уравнения позволяет определить показатель преломления n , коэффициент поглощения k ($n = n + ik$) и толщину пленки d [3]. При нахождении коэффициента поглощения материала пленки предполагается, что ослабление света, вызванное рассеянием излучения, значительно меньше его поглощения.

ФУРЬЕ-СПЕКТРОСКОПИЯ ВОЛНОВОДНЫХ МОД

В КВАЗИМОНОХРОМАТИЧЕСКОМ СВЕТЕ

Измерение спектрального коэффициента поглощения предполагает использование источника квазимонохроматического света, характеризуемого определенной шириной спектра излучения $\Delta\lambda$. Так как регистрируемое пространственное распределение интенсивности светового пучка, отраженного от основания призмного устройства возбуждения мод, связано с интерференцией световых пучков в структуре призма – волновод, то очевидно влияние степени когерентности излучения на это распределение. Известно, что интерференционная картина, регистрируемая в отраженном от призмы связи свете, имеет достаточ-

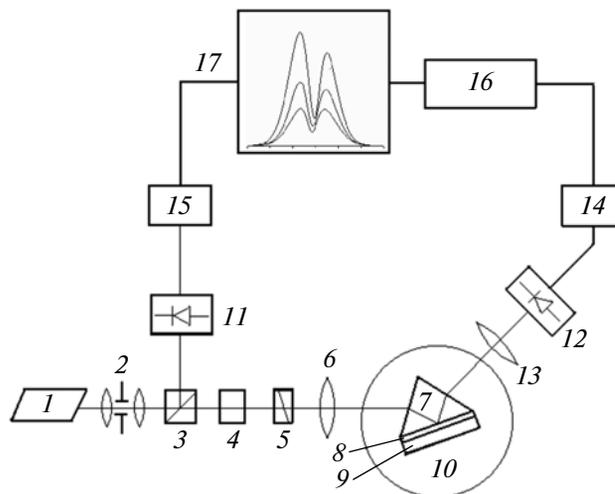


Рис. 1. Принципиальная схема установки: 1 – источник излучения, 2 – коллиматор, 3 – делитель пучка, 4 – аттенюатор, 5 – поляризатор, 6 – фокусирующий элемент, 7 – измерительная призма, 8 – волноводная пленка, 9 – подложка, 10 – поворотный столик, 11 и 12 – фотоприемники, 13 – оптический элемент, осуществляющий фурье-преобразование, 14 и 15 – блоки измерения интенсивности, 16 – аналого-цифровой преобразователь, 17 – компьютер.

но сложную структуру [16] и вырождается в симметричное распределение при его регистрации в схеме, приведенной на рис. 1. Естественно, что, в соответствии с принципами фурье-анализа, когерентность будет влиять и на регистрируемый фурье-спектр пучка.

Чтобы определить условия корректной регистрации спектров поглощения пленок в квазимонохроматическом свете, необходимо исследовать влияние $\Delta\lambda$ на регистрируемое распределение интенсивности отраженного пучка. Это можно сделать, используя излучение источника некогерентного света, прошедшее через монохроматор с различной шириной выходной щели или при использовании полупроводникового и газового лазеров в качестве источника излучения. Так как влияние когерентности излучения сказывается прежде всего на видности или контрасте интерференционной картины, который при проведении волноводных измерений в большей степени влияет на определение мнимой части постоянной распространения моды, то при проведении таких исследований в качестве критерия, определяющего степень влияния когерентности на распределение интенсивности, можно выбрать величину h'' .

На рис. 2а представлены результаты исследования зависимости h'' от $\Delta\lambda$ зондирующего излучения. При этом для того чтобы избежать оши-



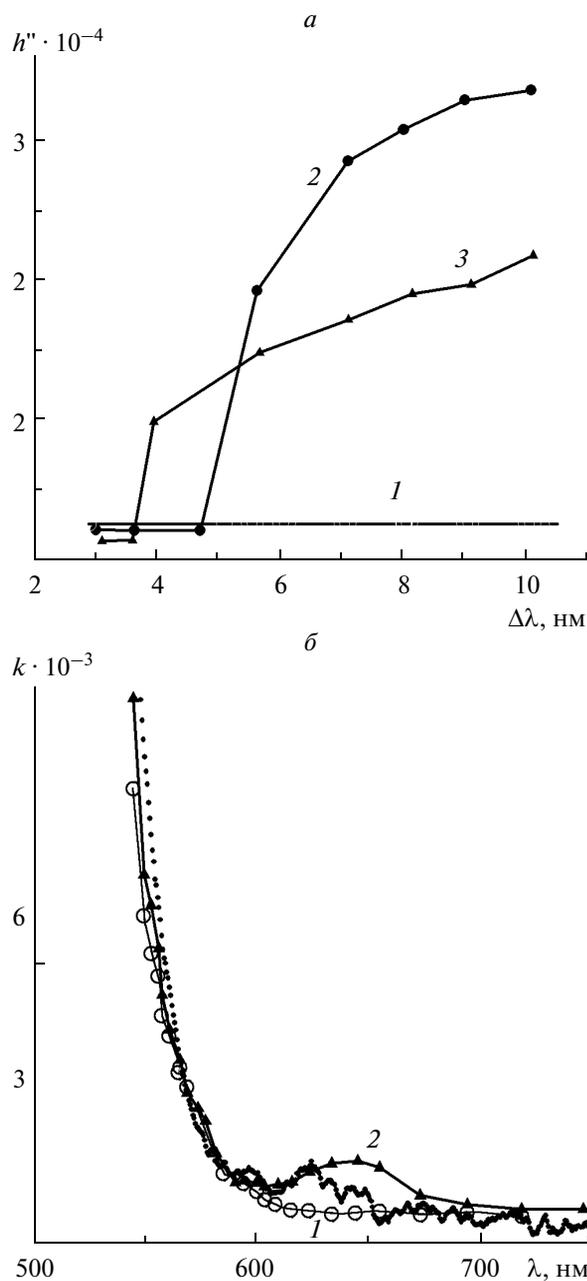


Рис. 2. Зависимость измеряемой величины h'' для ТМ-моды (а) от ширины спектра зондирующего излучения до 2 и после введения допирующей примеси в окружающую среду 3, 1 – h'' , измеренная с использованием излучения одномодового He–Ne-лазера (632.8 нм); и коэффициента поглощения (б), измеренного методом спектрофотометрии 1 и волноводной спектроскопии 2 для полимерной пленки, легированной азокрасителем метиловый красный,

бок, обусловленных влиянием неоднородности зазора между призмой и волноводом, использована “жесткая” схема, в которой на основание призмы связи нанесен буферный слой, а затем

последовательно – тонкопленочный волновод. Параметры буферного слоя, находящегося в зазоре между основанием призмы и волноводом, были определены для аналогичных тонкопленочных структур, которые были изготовлены в течение одного технологического цикла совместно со структурой “призма – буферный слой”.

Квазимонохроматическое излучение с длиной волны λ характеризуется некоторой шириной спектра $\Delta\lambda$, которая связана с длиной когерентности l_c выражением

$$l_c = \lambda^2 / \Delta\lambda. \quad (1)$$

С другой стороны, расстояние, которое проходит свет в волноводной пленке, равно $l_w = 1/2h''$, где $h = h' + ih''$ – комплексная постоянная распространения моды. На протяжении l_w свет переизлучается в призму и участвует в формировании интерференционной картины, тогда $\Delta\lambda = 2h'' \lambda^2$.

Как следует из анализа рис. 2а, при уменьшении $\Delta\lambda$ до значения 4 нм для данной волноводной моды наблюдается удовлетворительная корреляция значений h'' , полученных при использовании излучения лазера (кривая 1) и квазимонохроматического излучения (кривая 2). На основании выражения (1) длина когерентности для излучения монохроматора с $\Delta\lambda = 3$ нм равна ~ 130 мкм, с другой стороны длина трека распространяющего вдоль пленки волноводной моды, при $h'' = 3.7 \cdot 10^{-4}$ составляет ~ 150 мкм. Именно на этой длине излучение, распространяясь вдоль пленки, излучается в призму и участвует в формировании интерференционной картины. Как видно, эти параметры имеют весьма близкие значения, как и измеренные h'' при использовании квазимонохроматического и лазерного излучения. Если поглощение в исследуемой структуре можно изменить, например, вводя донорную примесь в окружающую волновод среду, то вследствие различных значений h'' моды в каждом случае она имеет разную длину трека l_w . Тогда влияние спектральной ширины используемого излучения проявляется при различных значениях $\Delta\lambda$, что отчетливо видно в зависимостях $h''(\Delta\lambda)$ для мод волновода, сформированного диффузией азокрасителя метиловый красный в подложку из поликарбоната [17] (рис. 2, кривые 2 и 3).

Таким образом, при исследовании волноводных свойств пленки, возбуждаемой квазимонохроматическим светом, наблюдается ярко выраженная зависимость h'' от $\Delta\lambda$ некогерентного света, прошедшего через монохроматор. При $\Delta\lambda \leq \Delta\lambda_m$ имеем $h'' = h_l''$ ($l_c \approx l_w$), где h_l'' – значения h'' , измеренные с использованием излучения He–Ne-лазера.



ИЗМЕРЕНИЕ СПЕКТРАЛЬНОЙ ЗАВИСИМОСТИ ОПТИЧЕСКИХ ПАРАМЕТРОВ ТОНКОЙ ПЛЕНКИ

Анализ экспериментальных результатов показал, что при использовании соответствующей оптической схемы и ограничении спектральной ширины зондирующего излучения погрешность определения постоянной распространения волноводной моды по отношению к величине h'' , измеренной на длине волны лазерного излучения, не превышала 3%. В ходе измерений при перестройке спектральной частоты зондирующего излучения происходит изменение пространственного распределения интенсивности отраженного светового пучка, причем регистрируемая зависимость $I(\varphi)$ становится несимметричной. На вставке (см. рис. 1) приведено распределение интенсивности в сечении отраженного светового пучка, регистрируемое при возбуждении волноводной моды излучением с различной длиной волны.

Здесь следует подчеркнуть, что подход, используемый при определении постоянных распространения мод, учитывает влияние призмного элемента связи и дает возможность получать значения параметров, не зависящие от эффективности связи призмы с волноводом, а также не требует измерения абсолютных значений интенсивности света. Применение специальных приемов возбуждения мод тонкопленочного волновода и использование определенных методов обработки зарегистрированного распределения интенсивности позволяет избежать дополнительной юстировки оптического элемента связи в ходе перестройки падающего излучения по частоте. В результате можно определить коэффициент поглощения материала пленки в заданном спектральном интервале, а также ее показатель преломления и толщину.

В качестве примера, иллюстрирующего возможности волноводной спектроскопии тонких пленок, рассмотрим результаты исследования свойств тонкой пленки, полученной высокочастотным распылением керамической мишени из оксида цинка на подложку из кварцевого стекла при $T = 300$ К. Толщина пленки составляла 1.5 мкм, и в ней распространялись пять волноводных мод. Результаты измерения зависимости $h''(\lambda)$ для волноводной моды третьего порядка ТЕ-поляризации приведены на рис. 3.

Там же представлены значения $n(\lambda)$ и $k(\lambda)$ материала пленки, определенные волноводным методом, где k связано с коэффициентом поглощения соотношением $\alpha = 4\pi k/\lambda$. Метод позволяет регистрировать в пленках толщиной менее 1 мкм коэффициент поглощения $\sim 1 \text{ см}^{-1}$ ($k = 2 \cdot 10^{-6}$). Для достаточно толстых полупроводниковых

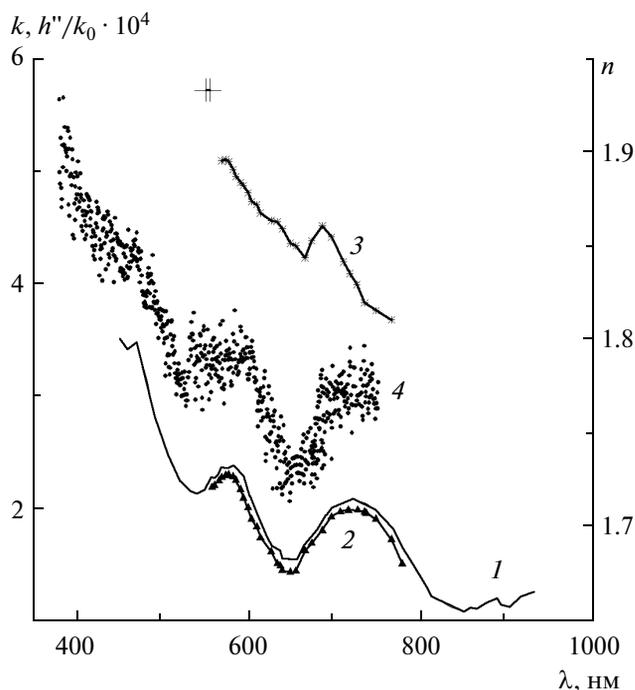


Рис. 3. Спектральные зависимости h'' (1), показателя преломления $n(\lambda)$ (3) и коэффициента поглощения $k(\lambda)$ (2) для пленки ZnO; зависимость $k(\lambda)$, измеренная методом спектроскопии пропускания (4).

пленок измерения значительно упрощаются, так как в этом случае $k \approx h''/k_0$ [14] и, как следует из анализа кривых, приведенных на рис. 3, спектральный коэффициент поглощения хорошо описывается зависимостью $h''(\lambda)$. В этом случае для определения коэффициента поглощения материала пленки достаточно измерить значения $h''(\lambda)$. Требование существования в исследуемой структуре направляемых мод необязательное, так как определение параметров пленки возможно при измерении постоянных распространения вытекающих мод [13].

При использовании волноводной спектроскопии возникают проблемы при определении значений $k(\lambda)$ менее 10^{-5} вследствие ограничений волноводного метода, связанных с “утечкой” энергии моды из-под призмного элемента связи [3], и этот факт следует учитывать при проведении измерений спектральной зависимости k для слабо поглощающих пленок.

Измерения спектров поглощения в видимом диапазоне позволяют исследовать влияние степени и характера легирования на свойства пленок. На рис. 4 представлены зависимости $k(\lambda)$ для пленок $\text{SnO}_2 : \text{Sb}_2\text{O}_5$, $\text{SnO}_2 : \text{Al}_2\text{O}_3$ и $\text{SnO}_2 : \text{WO}_3$. Измерения выполнены для пленок, полученных ВЧ-распылением керамической мишеней и нанесенных на



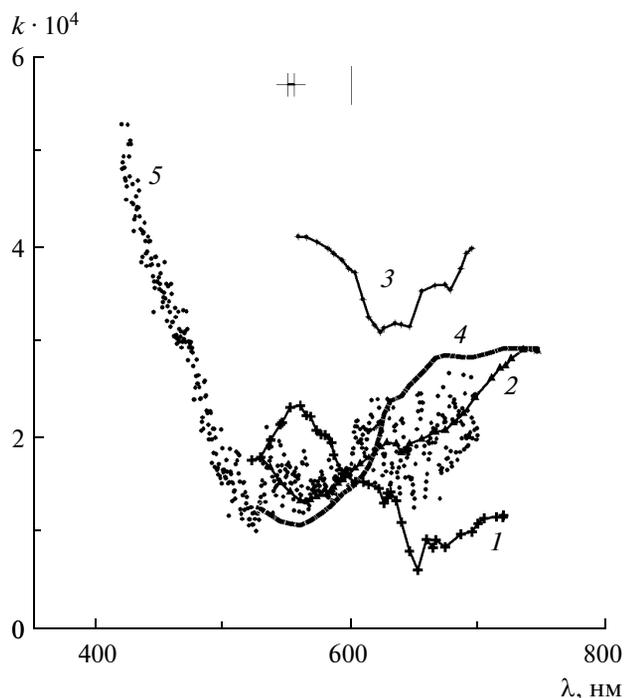


Рис. 4. Зависимости $k(\lambda)$ для пленок $\text{SnO}_2 : \text{Sb}_2\text{O}_5$ (1), $\text{SnO}_2 : \text{Al}_2\text{O}_3$ (3), $\text{SnO}_2 : \text{WO}_3$ в воздухе (2) и $\text{SnO}_2 : \text{WO}_3$ в смеси воздуха и паров этилового спирта (4); и для пленки $\text{SnO}_2 : \text{WO}_3$, измеренная методом фотометрирования пропускания (5).

подложку из кварцевого стекла при температуре 420 К. Толщина, например, пленки $\text{SnO}_2 : \text{Sb}_2\text{O}_5$ составляет 0.7 мкм, и в ней распространяются две моды ТЕ-поляризации. Из анализа приведенных зависимостей следует, что изменение материала примеси, а также степени легирования пленки проявляется в структуре и положении регистрируемых полос поглощения.

Чувствительность метода можно продемонстрировать на следующем эксперименте. Известно, что пленки двуокиси олова широко используются в качестве активного элемента газовых сенсоров [18]. Электрические свойства пленки меняются при адсорбции на ее поверхности молекул газа толщиной уже в один молекулярный слой. Естественно ожидать, что и спектрально-оптические параметры пленок будут претерпевать некоторые изменения. На рис. 4 представлены зависимости $k(\lambda)$ для пленки $\text{SnO}_2 : \text{WO}_3$ определенного состава в атмосфере воздуха и смеси воздуха с примесью этилового спирта (кривые 2 и 4 соответственно). Присутствие примеси вызывает изменение параметров пленки, что и регистрируется в ее спектре поглощения. Суммарная относительная погрешность определения $k(\lambda)$ с учетом систематической не превышала 5%.

Для того чтобы оценить корректность результатов, получаемых с помощью представляемого метода, выполнены измерения спектров поглощения красителя “метилловый красный”, традиционно используемого в оптике и свойства которого хорошо изучены. Известно, что его спектр поглощения стабилен и положение полос практически не зависит от матрицы, в которую он внедрен. Проведенные измерения спектра поглощения пленки полиметилметакрилата, легированного красителем, показывают удовлетворительные согласие результатов с данными, полученными известным методом (рис. 2б). Кроме того, для сравнения можно провести измерения значений спектрального коэффициента поглощения методом спектроскопии пропускания для исследуемых оксидных пленок.

На рис. 4 (кривые 2 и 5) приведены значения $k(\lambda)$ для пленки из $\text{SnO}_2 : \text{WO}_3$. Для представленных кривых наблюдается хорошая корреляция формы спектральных зависимостей, полученных обоими методами. Определение толщины пленки в ходе волноводных измерений также позволяет судить о корректности получаемых результатов путем сравнения полученного значения с толщиной пленки, измеренной независимым способом, например методом многолучевой интерферометрии или с помощью профилографа. Значение толщины пленки окиси цинка, полученное из волноводных измерений, было $d = 1.50 \pm 0.01$ мкм, а толщина пленки, измеренная с помощью профилографа, составила 1.50 ± 0.02 мкм.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Приведенные результаты позволяют говорить о возможности использования метода волноводной спектроскопии для определения спектрально-оптических параметров тонких пленок в видимой области спектра. Очевидно, что влияние степени когерентности на точность восстановления параметров волноводных мод требует дополнительных исследований ввиду того, что формирование картины распределения интенсивности в сечении отраженного пучка связано с интерференцией световых полей. Однако метод позволяет регистрировать в пленках толщиной менее 1 мкм коэффициент поглощения $\sim 10 \text{ см}^{-1}$. Для достаточно толстых полупроводниковых пленок измерения значительно упрощаются, так как в этом случае $k \approx h''$, и определение только величины $h''(\lambda)$ уже позволяет судить о коэффициенте поглощения материала пленки.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Ржанов А.В. Основы эллипсометрии. Новосибирск: Наука. 1979.



2. *Khomchenko A.V.* Waveguide spectroscopy of thin films. N.Y.: Acad. Press, 2005.
3. *Сотский А.Б.* Теория оптических волноводных элементов. Могилев: Изд-во МГУ им. А.А. Кулешова, 2011.
4. *Никитин П.И.* // Сенсорные системы. 1998. Т. 12. № 1. С. 69.
5. *Яковлев В.А., Сычугов В.А., Тищенко А.В.* // Письма в ЖТФ. 1982. Т. 8. Вып. 11. С. 665.
6. *Plowmen T.E., Saavedra S.S., Reichert W.M.* // Biomaterials. 1998. V. 19. P. 341.
7. *Oliver M., Peuzin J., Danel J.* // Appl. Phys. Lett. 1981. V. 38. № 2. P. 79.
8. *Редько В.П., Романенко А.А., Сотский А.Б., Хомченко А.В.* // Письма в ЖТФ. 1992. Т. 18. Вып. 4. С. 14.
9. *Соколов В.И., Марусин Н.В., Панченко В.Я. и др.* // Квант. электроника. 2013. Т. 43. № 12. С. 1149.
10. *Хомченко А.В., Сотский А.Б., Романенко А.А. и др.* // ЖТФ. 2005. Т. 75. № 6. С. 98.
11. *Хомченко А.В., Сотский А.Б., Романенко А.А. и др.* // Письма в ЖТФ. 2002. Т. 28. № 11. С. 51
12. *Cardin J., Leduc D.* // Appl. Opt. 2008. V. 47. № 7. P. 894.
13. *Сотский А.Б., Steingart L.M., Jackson J.H. и др.* // ЖТФ. 2013. Т. 83. № 11. С. 105.
14. *Хомченко А.В.* // Письма в ЖТФ. 2001. Т. 27. № 7. С. 17.
15. *Khomchenko A.V.* // Appl. Optics OT. 2002. V. 41. № 22. P. 4548.
16. *Monneret S., Huguet-Chantome P., Flory F.* // J. Opt. A: Pure Appl. Opt. 2000. V. 2. P. 188.
17. *Томов А.В., Хомченко А.В.* // Письма в ЖТФ. 2004. Т. 30. № 17. С. 83.
18. *Киселев В.Ф., Крылов О.В.* Электронные явления в адсорбции и катализе на полупроводниках и диэлектриках. М.: Наука, 1979.

