РОССИЙСКАЯ АКАДЕМИЯ НАУК

СИБИРСКОЕ ОТДЕЛЕНИЕ

АВТОМЕТРИЯ

№ 6 1993

УДК 535.51

В. А. Швец

(Новосибирск)

ОПРЕДЕЛЕНИЕ ПРОФИЛЕЙ ОПТИЧЕСКИХ ПОСТОЯННЫХ НЕОДНОРОДНЫХ СЛОЕВ ИЗ ЭЛЛИПСОМЕТРИЧЕСКИХ ИЗМЕРЕНИЙ IN SITU

Проанализирована система уравнений, связывающих изменение эллипсометрических параметров, измеряемых в процессе синтеза оптически неоднородного слоя, с распределением показателей преломления и поглощения по толщине. Решена обратная задача эллипсометрии для слабо неоднородных слоев и предложен алгоритм для определения профилей оптических постоянных. Проведено численное моделирование и показана эффективность данного алгоритма для неоднородных слоев CdHgTe на CdTe и AlGaAs на GaAs.

Введение. Метод эллипсометрии *in situ* успешно используется для контроля технологии синтеза полупроводниковых и диэлектрических слоев [1—5]. Измерения, проводимые на автоматическом эллипсометре в процессе формирования слоя, позволяют получить практически непрерывную зависимость эллипсометрических параметров ψ и Δ от времени, которая в координатах $\psi - \Delta$ имеет в общем случае вид сворачивающейся спирали. Для интерпретации этих зависимостей пользуются чаще всего моделью одного [1, 3] или двух [5] однородных слоев, подбирая их оптические постоянные и толщины таким образом, чтобы удовлетворить экспериментальным значениям ψ и Δ.

В том случае, если формируется заведомо неоднородный по толщине слой, такие простые модели не могут быть использованы и возникает задача определения зависимостей оптических постоянных: показателей преломления $n(z)$ и поглощения $k(z)$ (z — координата, направленная по нормали к поверхности). Решение этой задачи не представляет сложности, если известны ψ и Δ как функции z [6, 7]. К сожалению, в реальном эксперименте эллипсометрические параметры являются функцией времени и их зависимость от z неизвестна.

В настоящей работе рассматривается возможность восстановления профилей оптических постоянных $n(z)$ и $k(z)$ по экспериментальным кривым $\psi(t)$, $\Delta(t)$, где t — время или любой другой параметр, не связанный явно с координатой z.

Основные соотношения. Изменения эллипсометрических параметров при непрерывном увеличении толщины z неоднородного слоя описываются известной системой дифференциальных уравнений [7]:

$$\frac{1}{\rho}\frac{d\rho}{dz} = \beta(1 - N^2)\left(4\cos^2\varphi + \frac{(1+R_p)^2}{R_p}\left(\frac{\sin^2\varphi}{N^2} - \cos^2\varphi\right) - \frac{(1+R_s)^2}{R_s}\right) \equiv F_1(N), \quad (1)$$

$$\frac{dR_{p,s}}{dz} = \frac{4\pi i}{\lambda}\sqrt{N^2 - \sin^2\varphi}\;\frac{(R_{p,s} - r_{p,s})(r_{p,s}R_{p,s} - 1)}{1 - r_{p,s}^2}. \quad (2)$$

Здесь $\beta = \frac{\pi i}{\lambda\cos\varphi}$ и введены общепринятые обозначения: $\rho = \operatorname{tg}\psi\exp(i\Delta)$; φ — угол падения света, отсчитанный от нормали к поверхности образца; λ —

длина волны света; $R_{p,s} = R_{p,s}(z)$ — комплексные коэффициенты отражения, характеризующие систему подложка — неоднородный слой толщины z; индексы p и s соответствуют поляризации света в плоскости падения и по нормали к ней; $N = N(z) \equiv n(z) - ik(z)$ — распределение комплексного показателя преломления по толщине неоднородного слоя; $r_{p,s} = r_{p,s}(z)$ — коэффициенты отражения Френеля для p- и s-поляризаций, которые зависят от N и выражаются общеизвестными соотношениями (см., например, [8]).

Согласно уравнению (1) приращение комплексного эллипсометрического параметра $d\rho(z)$ при заданных значениях R_p и R_s является функцией текущего значения $N(z)$. Продифференцируем обе части этого уравнения по z. При этом в левой части $1/\rho$ внесем под знак дифференциала, а в правой части учтем, что производные dR_p/dz и dR_s/dz выражаются соотношениями (2). В результате получим

$$\frac{d^2(\ln\rho)}{dz^2} = \beta\left\{\beta(1 - N^2)\left(\frac{1 - R_p^2}{R_p^2} W_p + \frac{1 - R_s^2}{R_s^2} W_s\right) + WN'\right\} \equiv F_2(N, N'), \quad (3)$$

где

$$W_p = (N^2\cos^2\varphi - \sin^2\varphi)\left((R_p - 1)^2\cos^2\varphi - (R_p + 1)^2\frac{N^2 - \sin^2\varphi}{N^4}\right),$$

$$W_s = (R_s - 1)^2\cos^2\varphi - (R_s + 1)^2(N^2 - \sin^2\varphi),$$

$$W = 2N\left(\frac{(1 + R_s)^2}{R_s} + \frac{(1 - R_p)^2}{R_p}\cos^2\varphi\right) - \frac{2\sin^2\varphi}{N^3}\frac{(1 + R_p)^2}{R_p},$$

а через N' обозначена производная от N по z. Из (3) следует, что вторая производная от ρ зависит от функции N в данной точке и от ее производной N'. Последовательное дифференцирование выражения (3) приводит к уравнениям вида

$$\frac{d^m(\ln\rho)}{dz^m} = F_m(N, N', N'', \ldots, N^{(m-1)}), \qquad m = 3, 4, \ldots . \quad (4)$$

Здесь F_m — явно выраженные функции перечисленных параметров, а через $N'', \ldots, N^{(m)}$ обозначены соответствующие производные профиля $N(z)$. Согласно определению ρ имеем $\ln(\rho) = \ln(\mathrm{tg}\psi) + i\Delta \equiv \xi + i\Delta$ (здесь для удобства введена новая переменная $\xi = \ln(\mathrm{tg}\psi)$). Поскольку зависимость $\rho(z)$ неизвестна, перейдем в уравнениях (1), (3), (4) к рассмотрению зависимости $\Delta(\xi)$, заданной в параметрическом виде через z и, таким образом, исключим z. Пользуясь правилом дифференцирования параметрически заданных функций, получим следующую систему уравнений:

$$\begin{cases} \dfrac{d\Delta}{d\xi} = -i\dfrac{F_1(N) - F_1^*(N)}{F_1(N) + F_1^*(N)} \equiv G_1(N), \\ \dfrac{d^2\Delta}{d\xi^2} = 4i\dfrac{F_1(N)F_2^*(N, N') - F_1^*(N)F_2(N, N')}{(F_1(N) + F_1^*(N))^3} \equiv G_2(N, N'), \\ \cdots\cdots\cdots\cdots\cdots\cdots\cdots\cdots \\ \dfrac{d^m\Delta}{d\xi^m} = G_m(N, N', N'', \ldots, N^{(m-1)}). \end{cases} \quad (5)$$

Символом «*» в уравнениях (5) обозначены комплексно-сопряженные величины. Эти соотношения представляют собой систему вещественных алгебраических уравнений для определения N и производных $N', N'', \ldots, N^{(m-1)}$. В отличие от (1), (3), (4) левые части уравнений (5) определяются из эксперимента и могут считаться известными. Элементарный подсчет показывает, что при любом количестве уравнений число неизвестных оказывается вдвое больше, и, таким образом, система уравнений (5) не замкнута. Это значит, что для произвольного профиля $N(z)$ нельзя найти однозначного решения.

Задача, однако, существенно упрощается, если относительно зависимости $N(z)$ известно, что $N^{(m)} \equiv 0$ при $m \geq m_0$ (т. е. $N(z)$ — полином степени $m_0 - 1$). В этом случае добавление новых уравнений в (5), начиная с $m_0 + 1$-го, не увеличивает числа неизвестных и всегда можно выбрать достаточное их количество, чтобы система оказалась замкнутой. Если в некоторой точке $z = z_0$ известны коэффициенты отражения R_p и R_s, то из (5) можно численно определить значение N и всех производных N', N'' и т. д. в данной точке и таким образом восстановить искомый профиль $N(z)$ по всей толщине слоя.

В случае произвольной зависимости $N(z)$ рассматриваемая задача может быть решена, если $N(z)$ достаточно точно аппроксимируется полиномиальной функцией. Следует иметь в виду, что при последовательном дифференцировании экспериментальной кривой $\Delta(\psi)$ с увеличением порядка производной резко возрастает влияние случайных ошибок эксперимента. Поэтому целесообразно разбить весь неоднородный слой на интервалы и аппроксимировать $N(z)$ внутри каждого интервала полиномом более низкой степени. Последовательно определяя параметры искомого профиля внутри каждого интервала, можно восстановить $N(z)$ на всем исследуемом участке.

Рассмотрим простейший случай. Пусть зависимость $N(z)$ такова, что в уравнениях (5) можно пренебречь всеми производными и считать внутри каждого интервала $N(z)$ постоянной величиной. Такое допущение справедливо, если второе слагаемое в фигурных скобках выражения (3) много меньше первого. Отсюда легко получить условие применимости данного приближения:

$$\left|\frac{dN}{dz}\right| \ll \frac{\pi |N|}{\lambda}\alpha, \tag{6}$$

где $\alpha \sim 1$ — параметр, зависящий от коэффициентов отражения $R_{p,s}$ и угла падения света φ.

Найдем погрешности определения оптических постоянных δn и δk, обусловленные тем, что при решении уравнений (5) в G_2 принимаем $N' = 0$. Представим N' через производные n' и k': $N' = n' - ik'$. Рассматривая правые части первых двух уравнений (5) как функции n, k, n', k', приравняем их полные вариации нулю:

$$\begin{cases} \dfrac{\partial G_1}{\partial n}\delta n + \dfrac{\partial G_1}{\partial k}\delta k = 0, \\ \dfrac{\partial G_2}{\partial n}\delta n + \dfrac{\partial G_2}{\partial k}\delta k - \dfrac{\partial G_2}{\partial n'}n' - \dfrac{\partial G_2}{\partial k'}k' = 0. \end{cases} \tag{7}$$

Из системы линейных уравнений (7) несложно определить δn и δk, задавая значения n', k'. В первом порядке приближения погрешности δn и δk пропорциональны n', k'. На рис. 1 приведены рассчитанные согласно (7) значения искомых погрешностей как функции координаты z. Параметры структуры, для которой проведен расчет, следующие: оптические постоянные подложки $n_0 = 3$, $k_0 = 0{,}20$ $n(z) = 3{,}65 + 0{,}12z/\lambda$, $k(z) = 0{,}77 + 0{,}06z/\lambda$; $\varphi = 70°$, $\lambda = 632{,}8$ нм.

Существенным является тот факт, что $\delta n(z)$ и $\delta k(z)$ осциллируют по z с периодом $d_0/2$, где $d_0 = \lambda/2\sqrt{|N_{ср}^2| - \sin^2\varphi}$ — интерференционный квазипериод; $N_{ср}$ — некоторое среднее значение комплексного показателя преломления для неоднородного слоя. Такой характер зависимости δn и δk приводит к тому, что в расчетных профилях оптических постоянных появля-

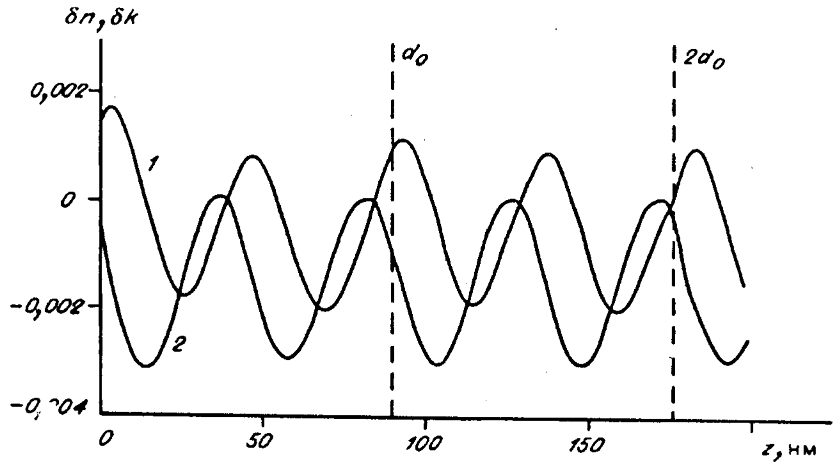

Рис. 1. Погрешности определения оптических постоянных — δn (кривая *1*) и δk (кривая *2*) — по толщине неоднородного слоя, обусловленные приближением метода: штриховыми линиями показаны границы квазипериодов

ется осциллирующая с периодом $d_0/2$ составляющая, которая обусловлена рассматриваемым приближением и должна быть усреднена.

Полученный результат не является неожиданным. Для слабопоглощающих слоев $\rho(z)$ — квазипериодическая функция с периодом d_0, а производные от Δ по ξ обладают следующими свойствами:

$$\left.\frac{d\Delta}{d\xi}\right|_{z+d_0/2} \simeq \left.\frac{d\Delta}{d\xi}\right|_z, \quad \left.\frac{d^2\Delta}{d\xi^2}\right|_{z+d_0/2} \simeq -\left.\frac{d^2\Delta}{d\xi^2}\right|_z.$$

Отсюда следует, что функции $G_1(N)$ и $G_2(N, N')$, а также их производные, фигурирующие в системе уравнений (7) в качестве коэффициентов при неизвестных, удовлетворяют таким же условиям. Нетрудно убедиться, что решения системы (7) — δn и δk — при этом будут квазипериодичны с периодом $d_0/2$.

Численное моделирование. Основываясь на вышеизложенных результатах, был организован алгоритм численного расчета профиля $N(z)$. Пусть $\{\psi_j, \Delta_j\}$ ($j = 0, 1, 2, ..., K$) — последовательно измеренные при росте слоя значения эллипсометрических параметров, причем $j = 0$ соответствует измерению на подложке. Согласно (5) и полагая $N' = 0$, запишем с точностью до членов разложения $\sim(\xi_{j+2} - \xi_j)^2$:

$$\begin{cases} \dfrac{\Delta_{j+2} - \Delta_j}{\xi_{j+2} - \xi_j} = G_1(N_{j,j+2}), \\ 2\,\dfrac{(\Delta_{j+2} - \Delta_{j+1})(\xi_{j+1} - \xi_j) - (\Delta_{j+1} - \Delta_j)(\xi_{j+2} - \xi_{j+1})}{(\xi_{j+2} - \xi_j)(\xi_{j+2} - \xi_{j+1})(\xi_{j+1} - \xi_j)} = G_2(N_{j,j+2}, 0). \end{cases} \tag{8}$$

Здесь $N_{j,j+2}$ — эффективное значение комплексного показателя преломления на интервале (z_j, z_{j+2}) между j-м и $j+2$-м измерениями. Расчет начинается при $j = 0$, при этом входящие в G_1, G_2 величины R_p и R_s соответствуют коэффициентам отражения подложки, которые известны или могут быть рассчитаны по измеренным параметрам ψ_0, Δ_0. Численным решением системы (8) находим $N_{0,2}$. Толщина слоя между 0-м и 2-м измерениями $\Delta z_{2,0} = z_2 - z_0$ рассчитывается для данного $N_{j,j+2}$ решением соответствующего квадратного уравнения [8]. После этого, используя соотношение (2), вычисляем значения

R_p, R_s в точке z_2. Далее весь цикл повторяется для следующего интервала (z_2, z_4) и т. д. по всей толщине неоднородного слоя.

Проверка вышеописанного алгоритма проводилась численным моделированием. Для конкретных профилей $n(z)$, $k(z)$ рассчитывались сначала зависимости эллипсометрических параметров $\{\psi_j, \Delta_j\}$ путем разбиения неоднородного слоя на элементарные подслои с постоянными значениями n_j, k_j [6]. Угол падения света выбирался равным 70°, а длина волны $\lambda = 632{,}8$ нм. Шаг разбиения составлял 0,1 нм и обеспечивал необходимую точность расчета эллипсометрических параметров. Затем из всей совокупности $\{\psi_j, \Delta_j\}$ произвольным образом проводилась выборка отдельных пар, которые имитировали экспериментальные данные. Эти значения эллипсометрических параметров использовались для нахождения значений $N_{j,j+2}$ и восстановления искомых профилей во всем исследуемом интервале.

На рис. 2, 3 представлены результаты таких расчетов для модельной ситуации роста пленки $Cd_{1-x}Hg_xTe$ переменного состава на подложке CdTe. Изменение состава в пленке задавалось следующей зависимостью:

$$x(z) = \begin{cases} 0{,}2, & \text{если} \quad z < 30 \text{ нм}, \\ 0{,}2 + 0{,}1(z - 30)/120, & \text{если} \quad 30 < z < 150 \text{ нм}, \\ 0{,}3, & \text{если} \quad z > 150 \text{ нм}. \end{cases}$$

Оптические постоянные твердых растворов кадмий-ртуть-теллура зависят от состава [9], и их распределение по толщине пленки, соответствующее данному $x(z)$, представлено на рисунках кривыми *1* (исходные профили). Рассчитанные по вышеописанному алгоритму зависимости $n(z)$ и $k(z)$ изображены кривыми *2*. Как и ожидалось, эти кривые осциллируют по z с периодом $d_0/2$, поэтому было проведено сглаживание осцилляций и получены восстановленные профили $n(z)$, $k(z)$ (3), которые практически совпадают с исходными.

При расчетах выборка значений $\{\psi_j, \Delta_j\}$ проводилась таким образом, чтобы получить разбиение всего слоя на участки по 4 нм. Уменьшение шага разбиения при фиксированной точности решения системы (8) приводит к «зашумлению» расчетных кривых аналогично тому, как это наблюдалось ранее в [6]. При увеличении интервалов разбиения требования к точности вычислений снижаются, однако при этом ухудшается разрешение профилей по z.

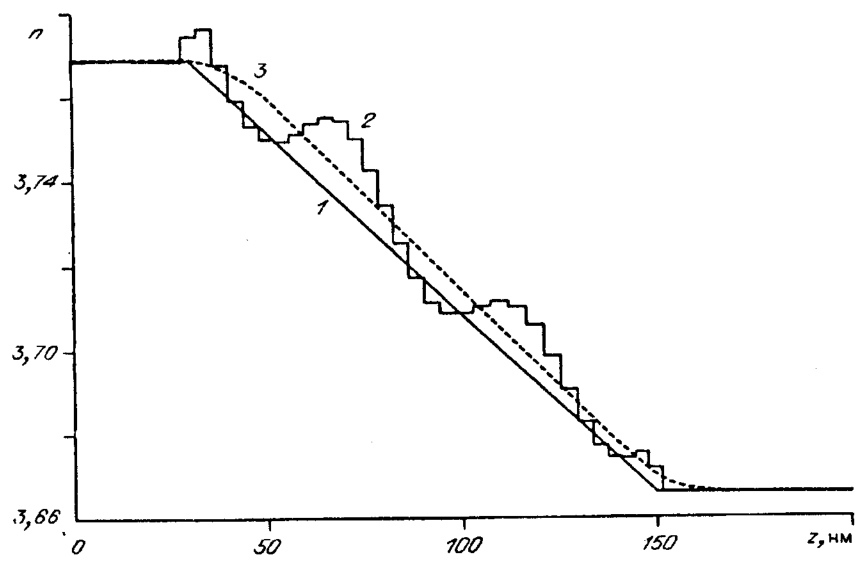

Рис. 2. Пленка CdHgTe на подложке CdTe.

Зависимость показателя преломления от толщины пленки: *1* — исходный, *2* — расчетный, *3* — сглаженный профили

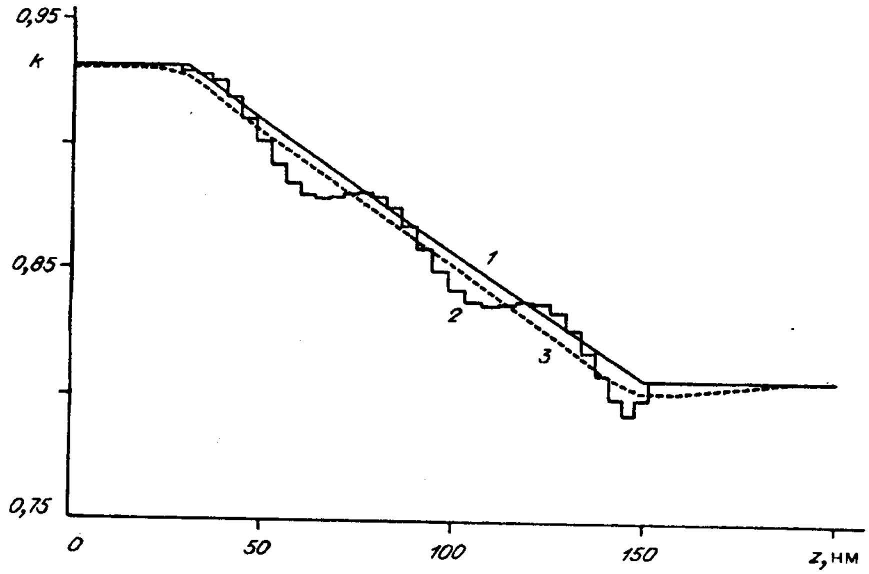

Рис. 3. Зависимость показателя поглощения пленки CdHgTe от ее толщины.
Обозначения те же, что и на рис. 2

Второй пример модельных расчетов проведен для случая роста пленки AlGaAs на подложке GaAs. Оптические постоянные материалов в этом случае соответствуют температуре синтеза слоев (T = 650—700 °C) [10] и для GaAs равны: $n = 4{,}2$, $k = 0{,}4$, а их изменение в слое задано произвольным образом и описывается следующими соотношениями (z — в нанометрах):

$$n(z) = 4 + 0{,}05\exp\left(\frac{z-100}{60}\right)^2, \qquad k(z) = 0{,}2 - \frac{0{,}1}{1+\exp((120-z)/50)}$$

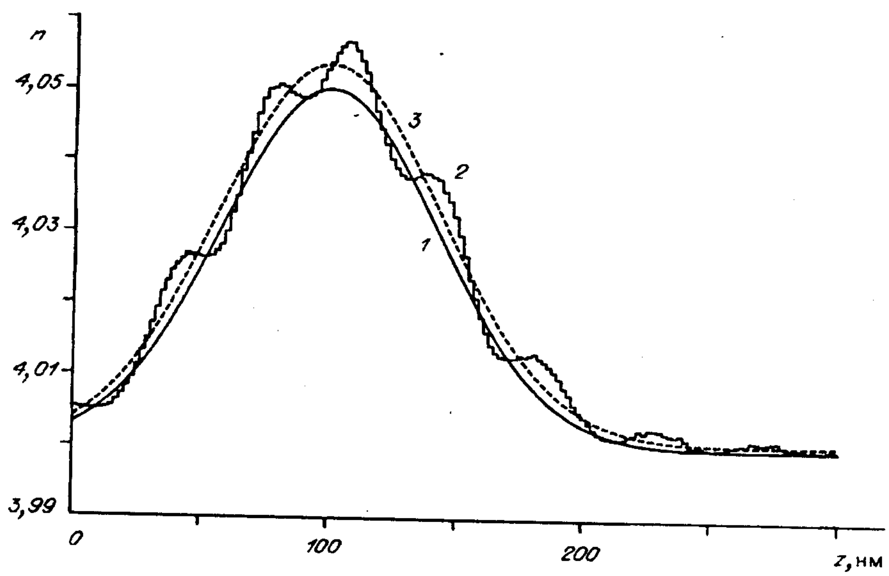

Рис. 4. Пленка GaAlAs на подложке GaAs.
Зависимость показателя преломления по толщине слоя, обозначения те же, что и на рис. 2, 3

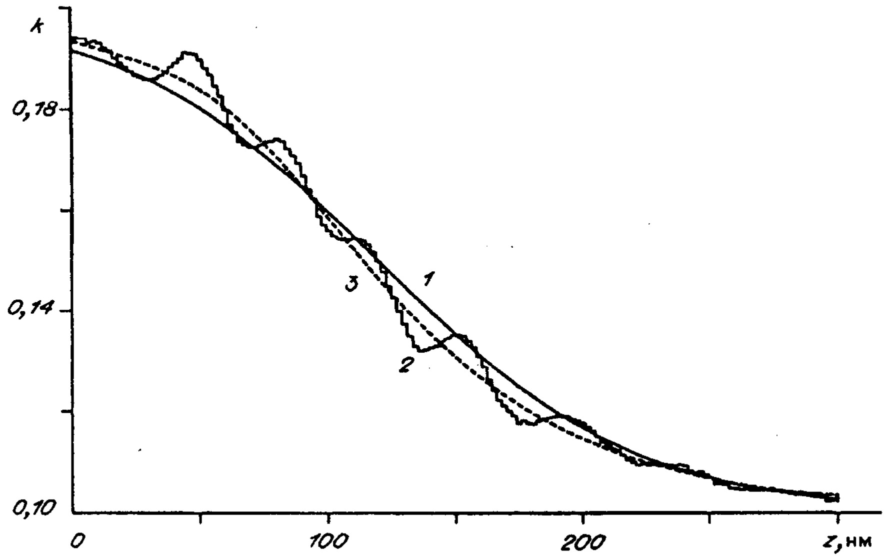

Рис. 5. Зависимость показателя поглощения пленки GaAlAs от ее толщины.
Обозначения те же, что и на рис. 4

(рис. 4, 5, кривые *1*). Соответствующая такой модели зависимость $\{\psi, \Delta\}$ (аналог экспериментальных данных) представляет собой самопересекающуюся кривую спирального вида и изображена на рис. 6. Начальная точка кривой соответствует подложке GaAs, стрелкой показано направление изменения ψ, Δ при увеличении z. Расчетные и сглаженные профили представлены на рис. 4, 5 кривыми *2*, *3*. Здесь также наблюдаются осцилляции в расчетных профилях, причем в соответствие с (8) их амплитуда зависит от градиентов оптических постоянных и в области $z > 200$ нм, где n' и k' малы, осцилляции почти исчезают. Хорошее совпадение исходных и восстановленных профилей оптических постоянных свидетельствует об эффективности рассматриваемого алгоритма.

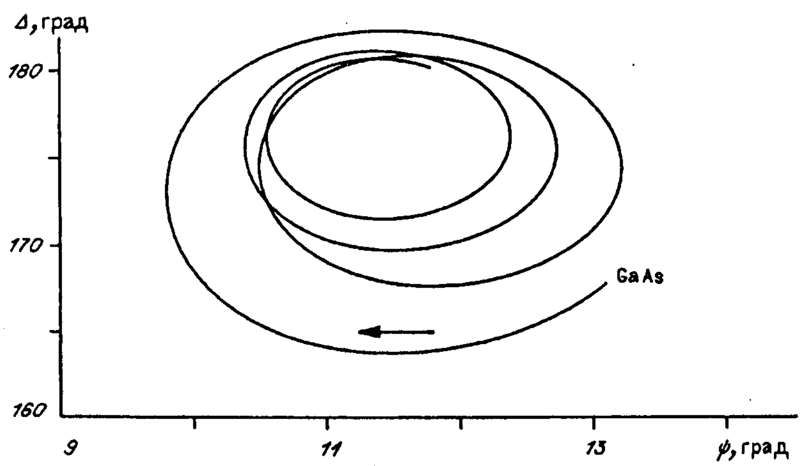

Рис. 6. Траектория изменения эллипсометрических параметров при росте слоя GaAlAs с оптическими постоянными, изображенными на рис. 4, 5:
стрелкой показано направление изменений ψ, Δ при увеличении толщины слоя

Остановимся на таком вопросе, как влияние случайных ошибок эксперимента на точность решения задачи. Анализ основных соотношений и численное моделирование позволяют утверждать, что точность определения $N_{j,j+2}$ на некотором интервале зависит от ряда факторов, таких как:

— величины случайных ошибок эксперимента $\delta\psi_i$, $\delta\Delta_i$ при $i = j, j+1, j+2$ (интересно отметить, что ошибки $\delta\psi_i$, $\delta\Delta_i$ при $i < j$ практически не сказываются на величине $N_{j,j+2}$, т. е. накопления ошибок не происходит);

— плотность экспериментальных точек $\{\psi_j, \Delta_j\}$ по толщине слоя: при более высокой плотности измерений случайная ошибка может быть уменьшена за счет усреднений;

— толщина данного интервала разбиения $d_{j,j+2} = z_{j+2} - z_j$.

Последний фактор непосредственно связан с требуемым разрешением профилей по z: если характерные размеры изменения кривых $n(z)$, $k(z)$ малы, необходимо более мелкое разбиение неоднородного слоя, и при фиксированной точности экспериментальных измерений это неизбежно приведет к увеличению ошибок нахождения оптических постоянных.

Для рассмотренных выше примеров характерна точность расчета профилей $\delta\overline{n} = \delta\overline{k} = 0{,}001$ при погрешности эксперимента $\delta\psi = \delta\Delta = 0{,}01°$, толщине разбиения 8 нм и плотности экспериментальных точек 0,25 измерений/нм. Эта точность не является предельной и может быть повышена, например, за счет увеличения плотности экспериментальных точек и интервалов разбиения.

Заключение. Представленные в работе математическое обоснование и модельные расчеты демонстрируют алгоритм, позволяющий определять профили оптических постоянных неоднородных слоев с малыми градиентами. При этом используются данные эллипсометрических измерений *in situ*, полученные в процессе формирования слоя. Существенно, что при этом не требуется никаких данных о толщине растущего слоя. Эти результаты могут оказаться полезными, например, при контроле процессов молекулярно-лучевой эпитаксии полупроводниковых слоев.

Следует отметить, что в данном рассмотрении все изменения эллипсометрических параметров связываются лишь с увеличением толщины неоднородного слоя. В реальном эксперименте на результаты измерений могут влиять также и другие факторы: развитие рельефа поверхности, зависимость оптических постоянных в слое от времени (например, за счет изменения температуры) и т. д. Очевидно, что в этом случае результаты расчетов будут нуждаться в коррекции.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Theeten J. B., Hottier F., Hallais J. Ellipsometric assesment of (Ga,Al)As/GaAs epitaxial layers during their growth in an organometallic VPE system // J. Cryst. Growth.—1979.—46.—P. 245.
2. Laurence G., Hottier F., Hallais J. Growth monitoring and characterization of (Al,Ga)As—GaAs heterostructures by ellipsometry // J. Cryst. Growth.—1981.—55.—P. 198.
3. Demay Y., Gailliard J. P., Medina P. *In situ* spectroscopic ellipsometry of mercury cadmium telluride MBE layers // J. Cryst. Growth.—1987.—81.—P. 97.
4. Мардежов А. С., Михайлов Н. Н., Швец В. А. Эллипсометрический контроль предэпитаксиальной подготовки подложек GaAs и роста эпитаксиальных пленок CdTe // Поверхность. Физика, химия, механика.—1990.—12.—С. 92.
5. Berlouis L. E. A., Peter L. M., Greef R., Astles M. G. *In-situ* spectroscopic characterization of passivation layers on (Cd,HgTe) // J. Cryst. Growth.—1992.—117.—P. 918.
6. Дагман Э. Е., Любинская Р. И., Мардежов А. С. и др. О решении обратной задачи эллипсометрии для неоднородных систем // УФЖ.—1984.—29, № 2.
7. Антонов В. А., Дронь О. С., Пшеницын В. И. Эллипсометрия неоднородных поверхностных слоев и пленок // Эллипсометрия — метод исследования поверхности.—Новосибирск: Наука, 1983.
8. Аззам Р., Башара Н. Эллипсометрия и поляризованный свет.—М.: Мир, 1981.

9. **McLevige W. V., Arias J. M., Edwall D. D., Johnston S. L.** Ellipsometric profiling of HgCdTe heterostructures // J. Vac. Sci. Technol.—1991.—B9(5).—P. 2483.

10. **Kawai H., Imanaga S., Kaneko K., Watanabe N.** Complex refractive indices of AlGaAs at high temperatures measured by *in situ* reflectometry during growth by metalorganic chemical vapor deposition // J. Appl. Phys.—1987.—61, N 1.—P. 328.

Поступила в редакцию 20 мая 1993 г.