

УДК 535.082.539
EDN: MOHVES

PACS: 42.40.Mu

Повышение точности определения оптических постоянных тонких пленок модифицированным методом нарушенного полного внутреннего отражения*С. И. Мошкунов, С. А. Филин, В. Ю. Хомич*

Предложен метод, позволяющий определять толщину и оптические постоянные тонких слоев. В основе метода лежит точное измерение углов падения света, соответствующих нулевому отражению в схеме нарушенного полного внутреннего отражения.

Ключевые слова: нарушенное полное внутреннее отражение, тонкие пленки.

DOI: 10.51368/1996-0948-2024-5-93-98

Введение

Методы исследования поверхности и систем тонких пленок, основанные на возбуждении поверхностных плазмонов (квантов плазменных колебаний) и формировании вследствие этого квазичастиц, возникающих в приповерхностном слое твердых тел в виде колеблющихся относительно ионов проводимости электронов под действием связанного с ними электромагнитного поля и находят в последнее время все большее применение [1–3]. Прежде всего это метод, основанный на использовании эффекта нарушения полного внутреннего отражения (НПВО), что обусловлено его высокой информативностью, тем, что в отличие, например, от эллипсометрии, он не требует проведения фазовых измерений [4], что значительно упрощает процедуру измерения, а также высокой чувствительностью

поверхностных плазмонов к состоянию исследуемой поверхности.

Метод НПВО применяют при измерении параметров оптически прозрачных и непрозрачных жидких, пасто- и гелеобразных веществ. При его использовании измеряют угломерным устройством критический (предельный) угол, при котором наблюдается НПВО, посредством, например, освещения плоскости соприкосновения двух сред расходящимся пучком света со стороны среды с большим показателем преломления. Полученные результаты посредством нормирующего коэффициента переводят в показатель преломления исследуемого вещества. Для определения дисперсии в заданном диапазоне длин волн измеряют показатель преломления вещества для крайних значений длин волн и вычисляют разность полученных показателей преломления вещества.

Широко известны устройства, построенные на методе НПВО [5], в которых оптический элемент (НПВО-призма) контактирует с исследуемым веществом. Граница соприкосновения двух сред: оптического элемента и исследуемого вещества освещается непараллельным пучком света. Часть последнего, падающая на границу соприкосновения под углом менее критического, уходит в исследуемое вещество, а часть, падающая под большими углами на границу соприкосновения, претерпевает полное внутреннее отражение и проецируется на фотоприемное устройство –

Мошкунов Сергей Игоревич, рук. направления электроэнергетики, д.т.н., чл.-корр. РАН.

E-mail: serg-moshkunov@yandex.ru

Филин Сергей Александрович, в.н.с., к.т.н., д.э.н.**Хомич Владислав Юрьевич**, научн. рук., д.ф.-м.н., академик РАН.

Институт электрофизики и электроэнергетики РАН.

Россия, 191186, Санкт-Петербург, Дворцовая наб., 18.

*Статья поступила в редакцию 21.08.2024**После доработки 13.09.2024**Принята к публикации 19.09.2024*

прибор с зарядовой связью (ПЗС-линейка). По положению границы света и тени на последней определяют показатель преломления исследуемого вещества. Измерение дисперсии осуществляют путем последовательных измерений показателя преломления для разных длин волн посредством перенастройки аппаратуры с одной длины волны на другую [6].

Для обеспечения возможности одновременного автоматического измерения дисперсии исследуемого вещества с измерением его показателя преломления используют устройство, содержащее светорассеиватель, преобразующий потоки с разной длиной волны монохроматического излучения от светодиодов в единый расходящийся пучок света, НПВО-призму из стекла с высоким показателем преломления, рабочая грань которой соприкасается с исследуемым веществом, многоэлементное матричное фотоприемное устройство (ММФУ) со спектральной чувствительностью пикселей на длины волн, сопряженные с длинами волн излучения светодиодов, микропроцессор и дисплей, подключенный к информационному выходу микропроцессора [7]. Показатель преломления и дисперсию определяют посредством освещения плоскости соприкосновения исследуемого вещества с НПВО-призмой расходящимся пучком света, сформированным светорассеивателем, часть света, претерпевшую полное внутреннее отражение, направляют на ММФУ, на фоточувствительной поверхности которого формируют зоны света и тени, получают отдельные для каждой длины волны спектральные сигналы, измеряют для каждой строки ММФУ длительность импульса, соответствующего зоне тени для каждого спектрального сигнала, определяют средние значения длительности данных импульсов для всех участвующих в измерении строк, их отношение к длительности строки ММФУ, по полученному отношению определяют показатель преломления исследуемого вещества для данной длины волны и разность между показателями преломления для разных длин волн, пропорциональную дисперсии для данного диапазона длин волн [8].

Недостатком данных устройств является то, что они не предназначены для измерения показателей преломления и поглощения электропроводящих образцов и толщины тонких

пленок на их поверхности и измерение критического угла проводят по и только в одной точке пересечения недостаточно четкой границы света и тени со шкалой или с одним фотоприемным элементом [9]. Для решения указанных в недостатках задач используют две основные схемы (Отто [10] и Кретчмана [11]) метода НПВО. Схема Отто позволяет исследовать более широкий класс объектов, однако требует точной установки величины зазора между НПВО-призмой и образцом. Для решения этой проблемы в работе [12] зазор и угол падения подстраиваются, так, чтобы коэффициент отражения был равен нулю. Измеряемой величиной при этом является только угол падения света.

В данном исследовании проводится анализ точности метода НПВО нулевого отражения (НПВО НО) и предлагается новый модифицированный метод, позволяющий повысить точность измерений двух и трех неизвестных параметров исследуемой системы.

Точность определения оптических параметров многослойных систем методом НПВО

Рассмотрим схему Отто [10] в общем случае многослойного образца (рис. 1). НПВО-призма с показателем преломления n_p расположена над средой, состоящей из l слоев с номерами $j = 1, 2, \dots, l$, причём первым слоем будем считать зазор между призмой и образцом. Многослойная среда находится на подложке с показателем преломления n_s . В данной системе показатели преломления НПВО-призмы и зазора действительны, а для других слоев, вообще говоря, – комплексные.

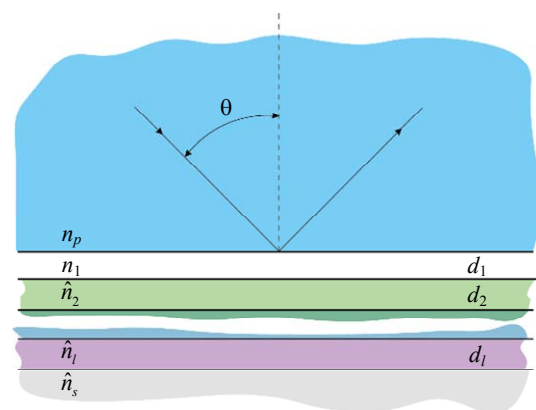


Рис. 1. Схема Отто для общего случая многослойного образца

Метод НПВО НО заключается в нахождении сочетания таких значений угла падения пучка Θ и зазора d_1 , при котором коэффициент отражения обращается в нуль. Формула определения комплексного коэффициента отражения структурой р-поляризованного пучка для данной многослойной системы приведена в работе [13]:

$$\hat{r} = \frac{m_{12} - (Z_s m_{12} - Z_u m_{11}) - Z_u Z_s m_{12}}{m_{12} - (Z_s m_{12} + Z_u m_{11}) + Z_u Z_s m_{12}} = \frac{N}{D}, \quad (1)$$

где m_{ij} – коэффициент матрицы M , равной

$$M = M_1 M_2 \dots M_{l-1} - M_l,$$

$$\text{где } M_j = \begin{bmatrix} \cos(k\tau_j d_j) & iZ_j \sin(kd_j) \\ iY_j \sin(k\tau_j d_j) & \cos(k\tau_j d_j) \end{bmatrix},$$

$$Z_j = 1/Y_j = \tau_j / n_j^2, \quad \tau_j = \sqrt{n_j^2 - \chi^2}, \quad \chi = n_p \sin \theta,$$

$$k = 2\pi / \lambda.$$

Будем считать, что угол падения является известной величиной, полученной в результате измерения, что позволяет записать систему с двумя уравнениями с действительными членами, которые можно разрешить относительно d_1 и любого одного параметра многослойного объекта.

$$\begin{aligned} \text{Re } N(\theta, n_p, n_1, d_1, n_2, k_2, d_2, \dots, n_l, k_l, d_l, n_s, k_s) &= 0, \\ \text{Re } D(\theta, n_p, n_1, d_1, n_2, k_2, d_2, \dots, n_l, k_l, d_l, n_s, k_s) &= 0. \end{aligned} \quad (2)$$

Для определения более чем одного параметра объекта необходимо соответствующее число раз повторить измерения при других значениях n_p и n_1 , т. е. с разными НПВО-призмами и/или веществами в зазоре.

Однако проблема в том, что изменение одного параметра не всегда приводит к независимым уравнениям относительно искомым параметров, и, даже независимые в строгом смысле уравнения могут давать решения, сильно зависящие от входящих параметров. Так как точность определения последних конечна, то результирующая погрешность измерения данным методом может оказаться слишком высокой.

Для анализа точности определения искомым параметров представим полученную систему уравнений в виде:

$$\mathbf{f}(\mathbf{x}, \mathbf{y}) = 0, \quad (3)$$

где $\mathbf{x} = (x_1, \dots, x_l)$ – искомые параметры системы уравнений, $\mathbf{y} = (y_1, \dots, y_l)$ – известные параметры и $\mathbf{f} = (f_1, \dots, f_l)$.

Предположим, что значение параметров \mathbf{y} отличается от истинных на величину $\delta \mathbf{y}$. Это приведет к решению, отличающемуся на $\delta \mathbf{x}$ от истинного \mathbf{x} . Подставляя $(\mathbf{x} + \delta \mathbf{x})$ вместо \mathbf{x} и разлагая в ряд до членов первого порядка, а также учитывая, что $\mathbf{f}(\mathbf{x}, \mathbf{y}) = 0$, получаем (здесь и далее под векторами будем подразумевать векторы-столбцы):

$$\mathbf{A} \delta \mathbf{x} = -\delta \mathbf{y}, \quad (4)$$

$$\text{где } \mathbf{A} = \frac{\partial f_i}{\partial x_k}, \quad \mathbf{B} = -\frac{\partial f_i}{\partial y_k}.$$

Условием единственности решения этой системы является $(\det \hat{\mathbf{A}} \neq 0)$, откуда следует существование \mathbf{A}^{-1} и решение запишется в виде:

$$\delta \mathbf{x} = -\mathbf{A}^{-1} \mathbf{B} \delta \mathbf{y}. \quad (5)$$

Предположим, что ошибка носит случайный характер и распределения отдельных компонентов вектора $\delta \mathbf{y}$ – независимы. Тогда для величины дисперсии получим:

$$\sigma(\delta x_i) = \sigma\left(\sum_j c_{ij} \delta y_j\right) = \sqrt{\left(\sum_j c_{ij} \delta y_j\right)^2}, \quad (6)$$

где c_{ij} – элементы матрицы $-\mathbf{A}^{-1} \mathbf{B}$. В силу независимости отдельных компонентов $(\overline{\delta y_i \delta y_j} = 0, i \neq j)$ имеем:

$$\sigma(\delta x_i) = \sqrt{\sum_j c_{ij}^2 \sigma(y_j)^2}. \quad (7)$$

Проанализируем точность определения параметров системы методом НПВО НО на

примере системы, представленной на рисунке 2а [10]. Рассмотрим случай 1, когда неизвестны два параметра системы n_m и k_m и случай 2 с тремя неизвестными параметрами d_m , n_m и k_m металлической пленки Au толщиной 50 нм, нанесенной на стеклянную подложку с известным показателем преломления, равным 1,512.

Экспериментально нахождение НО-угла было промоделировано путем численного ре-

шения системы уравнений (2) относительно θ и d_m при заданных «истинных» значениях параметров $n_m = 0,225$, $k_m = 3,312$, $\lambda = 50$ нм. Длина волны излучения принималась равной 630 нм. По описанной выше методике были вычислены для классического НПВО НО (таблица) погрешности (в предположении, что основной вклад вносит точность измерения НО-угла, принятого за $1'$) для случаев измерения двух (а) и трех (б) параметров системы.

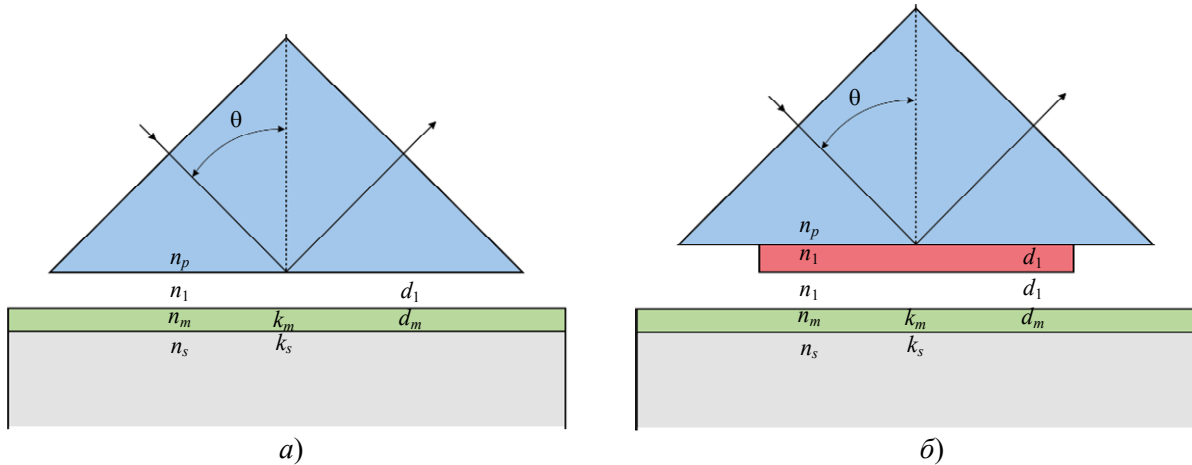


Рис. 2. Схема исследуемой темы. Образец – металлическая пленка на диэлектрической подложке. а) – схема Отто, б) – модифицированная схема НПВО НО

Таблица

Результаты моделирования

Метод измерения	Измеряемые параметры пленки	Угол падения при нулевом отражении	Показатели преломления НПВО-призмы, дополнительной пленки и зазора			Погрешности измерения методом НПВО НО		
			n_p	n_f	n_g	$\delta n_m/n_m, \%$	$\delta k_m/k_m, \%$	$\delta d_m/d_m, \%$
1. Классический НПВО НО	(а) n_m, k_m	43,661 23,933	1,5 2,584		1 1	23	11	
	(б) n_m, k_m, d_m	35,842 54,036 33,993	1,784 1,784 2,584		1 1,33 1,33	23	11	25
2. Модифицированный НПВО НО	(в) n_m, k_m	43,661 23,933	1,5 1,5	2,58	1 1	8,9	0,08	
	(г) n_m, k_m, d_m	35,842 54,036 44,125	1,784 1,784 2,584		1 1,33 1	23	11	25

Погрешности определения неизвестных параметров в случаях (а) и (б) в таблице оказались достаточно высокими, что обусловлено тем, что уравнения системы (2), отличающиеся только значениями n_p , сильно коррелируют

между собой. Для устранения этого недостатка была предложена схема, где на основании НПВО-призмы имеется дополнительная с регулируемым показателем преломления диэлектрическая пленка толщиной s (рис. 2б).

Основная идея состоит в измерении при разных значениях НО-углов, что с точки зрения получения независимых уравнений оказывается значительно эффективнее, чем варьирование только параметра n_p . Наиболее эффективными для этой цели являются пленки с четвертьволновой оптической толщиной (рис. 3).

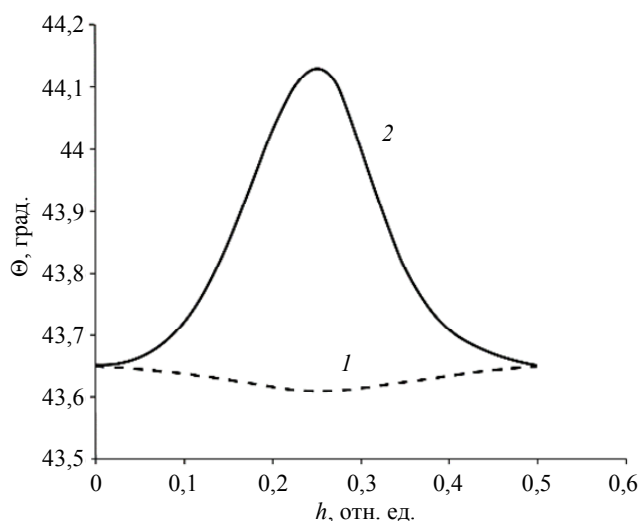


Рис. 3. Зависимость НО-угла Θ в схеме на рис. 2а от безразмерной оптической толщины дополнительной пленки $h = d n_f / \lambda \cos \Theta_f$. Кривая 1 – $n_f = 2,58$, кривая 2 – $n_f = 1,35$. В обоих случаях $n_p = 1,5$

Расчеты погрешностей измерения для модифицированной схемы (рис. 2б) для тех же двух случаев, что (а) и (б) показывают более чем десятикратное улучшение точности измерений (таблица (в) и (г)). Методика определения оптических параметров и толщины пленки электропроводящих образцов по модифицированному НПВО НО включает воздействие на образец р-поляризованным монохроматическим излучением, возбуждение по методу НПВО этим излучением поверхностных электромагнитных волн в волноведущей структуре, содержащей образец и диэлектрическую пленку с регулируемыми параметрами, регистрацию интенсивности отраженного излучения и измерение угла падения Θ , соответствующего 100% эффективности возбуждения поверхностных электромагнитных волн, расчет оптических параметров образца с использованием формулы (1) и значений угла Θ , измеренных при разных значениях параметров диэлектрической пленки.

Заключение

В работе исследована точность метода НПВО, основанная на использовании НПВО-призм с разными показателями преломления, при измерении оптических постоянных тонких пленок. Показано, что данный метод может приводить к значительным ошибкам измерения. Предложенный модифицированный метод НПВО НО, основанный на использовании НПВО-призмы с нанесенным на ее основание диэлектрическими пленками с регулируемыми параметрами, обеспечивает более высокую точность измерений и упрощение процедуры измерения путем локального нанесения диэлектрических пленок на основание лишь одной НПВО-призмы. Также отсутствует необходимость использования НПВО-призм с высокими показателями преломления.

Предложенный модифицированный метод НПВО НО может найти применение в металлооптике, при производстве металлодиэлектрических волноведущих структур, металлических зеркал и подложек.

ЛИТЕРАТУРА

1. Tillin M. D., Sambles J. R. / Thin solid films. 1989. Vol. 172. № 1. P. 27–34.
2. O'neil-Petersen M., Zhu B. S., Dalsgaard E. / JOSA A. 1987. Vol. 4. № 9. P. 1741–1747.
3. Evtushenko S. D., Moshkunov S. I., Sisakyan I. N., Khomich V. Yu. / Technical Physics Letters. 1990. Vol. 16. № 10. P. 744–745.
4. Филин С. А. Способ определения толщины пленки. Патент на изобретение № 2787807 (РФ). 2023.
5. Сало Х. Рефрактометр. Патент на изобретение № 6067151 (США). 2000.
6. Андреева Н. П., Барашков М. С., Евстигнев В. Л., Крымский М. И., Митин К. В., Роголин В. Е., Щebetова Н. И. / Контенант. 2018. Т. 17. № 1. С. 5–28.
7. Кропотов Г. И., Шахмин А. А., Каплунов И. А., Роголин В. Е. / Фотоника. 2023. Т. 17. № 5. С. 378–393.
8. Волков Р. И., Филатов М. И. Способ измерения показателя преломления и дисперсии и устройство для его реализации. Патент на изобретение № 2562270 (РФ). 2015.
9. Афанасьев В. А. Оптические измерения. – М.: Высшая школа, 1981.
10. Otto A. / Zeitschrift fur Physik. 1968. Vol. 216. P. 398–410.
11. Kretschmann E. / Zeitschrift für Physik A Hadrons and nuclei. 1971. Vol. 241. P. 313–324.
12. Kitajima H., Hieda K., Suematsu Y. / Applied optics. 1981. Vol. 20. № 6. P. 1005–1010.
13. Kou E. F. Y., Tamir T. / Applied optics. 1988. Vol. 27. № 19. P. 4098–4103.

Improving the accuracy of determination of optical constants of thin films by modified method of disturbed total internal reflection

S. I. Moshkunov, S. A. Filin and V. Yu. Khomich

¹Institute for Electrophysics and Electric Power RAS
18 Dvortsovaya nab., St.-Petersburg, 191186, Russia
E-mail: serg-moshkunov@yandex.ru

Received 21.08.2024; revised 13.09.2024; accepted 19.09.2024

A method is proposed for determining the thickness and optical constants of thin layers. The method is based on the accurate measurement of the angles of incidence of light corresponding to zero reflection in the disturbed total internal reflection scheme.

Keywords: broken total internal reflection, thin films.

REFERENCES

1. Tillin M. D. and Sambles J. R., Thin solid films **172** (1), 27–34 (1989).
2. Owner-Petersen M., Zhu B. S. and Dalsgaard E., JOSA A **4** (9), 1741–1747 (1987).
3. Evtushenko S. D., Moshkunov S. I., Sisakyan I. N. and Khomich V. Yu., Technical Physics Letters **16** (10), 744–745 (1990).
4. Filin S. A. Possibility of determining film thickness. Patent for invention № 2787807 (RF). 2023.
5. Salo H. Refractometer. Patent for invention № 6067151 (US). 2000.
6. Andreeva N. P., Barashkov M. S., Evstigneev V. L., Krymsky M. I., Mitin K. V., Rogalin V. E. and Shchebetova N. I., Content **17** (1), 5–28 (2018) [in Russian].
7. Kropotov G. I., Shakhmin A. A., Kaplunov I. A. and Rogalin V. E., Photonics **17** (5), 378–393 (2023).
8. Volkov R. I. and Filatov M. I. Patent for invention № 2562270 (RU). 2015.
9. Afanasyev V. A., Optical measurements, Moscow, Higher School, 1981 [in Russian].
10. Otto A., Zeitschrift für Physik **216**, 398–410 (1968).
11. Kretschmann E., Zeitschrift für Physik A Hadrons and nuclei **241**, 313–324 (1971).
12. Kitajima H., Hieda K. and Suematsu Y., Applied optics **20** (6), 1005–1010 (1981).
13. Kou E. F. Y. and Tamir T., Applied optics **27** (19), 4098–4103 (1988).