

Лазерный метод определения толщины нанопленок золота на кварцевой подложке, основанный на измерении коэффициента пропускания

12, декабрь 2012

DOI: 10.7463/1212.0507361

Городничев В. А., Белов М. Л., Федотов Ю. В.

УДК 551.501

Россия, НИИ Радиоэлектроники и лазерной техники МГТУ им. Н.Э. Баумана

belov@bmstu.ru

ekomonit@bmstu.ru

gorod@bmstu.ru

Введение

Создание упорядоченных металлических наноструктур и контроль их параметров является сложной технологической задачей. Первым технологическим этапом этой задачи является напыление тонкого металлического покрытия на диэлектрическую подложку. Для задач, использующих эффект поверхностного плазмонного резонанса (который можно наблюдать только на границах раздела металл-диэлектрик), в качестве металла оптимальным по целому ряду причин считается выбор золота (см., например, [1]). В качестве диэлектрической подложки выбирается кварц по причине высокого коэффициента пропускания и отсутствия дисперсии диэлектрической проницаемости в видимом и ближнем инфракрасном диапазоне.

Нанесение тонкой пленки золота на кварцевую подложку происходит обычно с использованием метода магнетронного распыления, а толщина пленки контролируется непосредственно в процессе ее получения (*in situ* методы). Для контроля тонких металлических пленок наиболее используемым *in situ* методом на сегодняшний день является метод рентгеновской рефлектометрии (см., например, [2-4]). Этот метод позволяет проводить неразрушающий контроль; измерения могут проводиться как в вакууме, так и в среде рабочего газа; источник и детектор рентгеновского излучения вынесены за пределы вакуумного объема.

Конкуренцию методу рентгеновской рефлектометрии может составить лазерный рефлектометрический метод (см., например, [5-7]).

Для задачи измерения тонких металлических пленок лазерный рефлектометрический метод [8] обладает практически всеми положительными качествами метода рентгеновской рефлектометрии и потенциально может быть реализован в виде менее сложного (а значит и менее дорогого) оборудования. Этот метод, конечно, не пригоден для контроля металлических пленок с толщиной сотни нанометров и более, но может быть использован для измерения пленок с толщиной единицы нанометров – десятки нанометров.

Более простую (чем рефлектометрический метод, основанный на измерении коэффициента отражения) схему измерения толщины пленок имеет лазерный фотометрический метод, который использует только информацию о коэффициенте пропускания четырехслойной системы "воздух (вакуум) - пленка – подложка- воздух (вакуум)". Этот метод достаточно подробно исследован для тонких прозрачных пленок (см., например, [9-11]).

Ниже исследуются возможности лазерного метода измерения толщины металлических нанопленок диэлектрической подложке (на примере нанопленок золота на кварцевой подложке), основанного на измерении коэффициента пропускания четырехслойной системы «воздух (вакуум) – пленка- подложка- воздух (вакуум)».

Постановка задачи

Считаем, что пленка - металлическая с большим показателем поглощения. Излучение проходит в однородной среде с показателями преломления n_0 и поглощения k_0 , падает на однородную пленку (с плоскопараллельными границами) с толщиной d_1 , показателями преломления n_1 и поглощения k_1 , расположенную на толстой однородной подложке с показателями преломления n_2 и поглощения k_2 и толщиной d_2 и далее распространяется в однородной среде с показателями преломления n_3 и поглощения k_3 (рисунок 1).

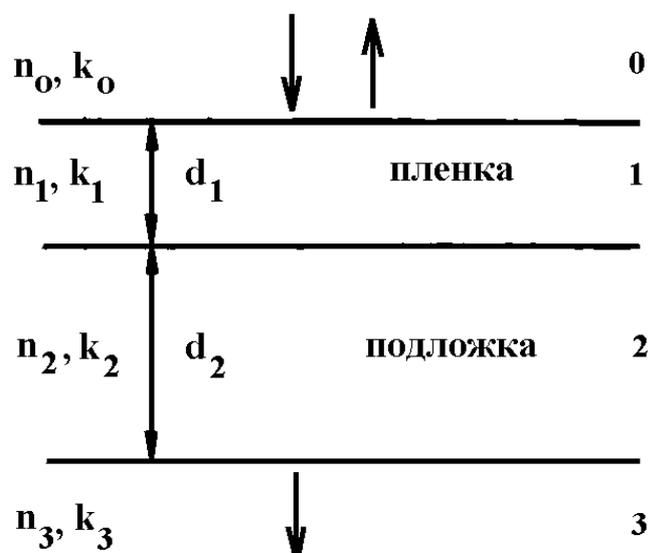


Рис. 1. Схема измерения. Для измерений используется только одна длины волны излучения λ .

Положим показатель преломления вакуума (воздуха) равным единице $n_{0,3} = 1$, а показатель поглощения - равным нулю $k_{0,3} = 0$.

Метод определения толщины металлических нанопленок диэлектрической подложке, основанный на измерении коэффициента пропускания

Для четырехслойной системы «воздух (вакуум) – пленка – подложка – воздух (вакуум)» выражение для пропускной T способности (энергетического коэффициента пропускания) имеет вид (считается, что интерференционными эффектами в подложке можно пренебречь) (см., например, [12]):

$$T = \frac{T_{02}T_{23} \exp\left[-\frac{4\pi k_2 d_2}{\lambda}\right]}{1 - R_{21}R_{23} \exp\left[-\frac{8\pi k_2 d_2}{\lambda}\right]} \quad (1)$$

В формуле (1) R_{23} - коэффициент отражения на границе раздела «подложка (среда 2) – воздух (среда 3)», $R_{23} = \frac{(n_2 - n_0)^2 + (k_2 - k_0)^2}{(n_2 + n_0)^2 + (k_2 + k_0)^2}$; T_{23} - коэффициент

пропускания этой границы, $T_{23} = 1 - R_{23}$; T_{02} - коэффициент пропускания пленки, ограниченной с двух сторон средами 0 (воздух) и 2 (подложка); R_{21} - коэффициент отражения на границе раздела «подложка (среда 2) – пленка (среда 1)» со стороны подложки.

При вертикальном падении излучения коэффициент пропускания системы "воздух (вакуум) - пленка - подложка" T_{02} и коэффициент отражения на границе раздела «подложка (среда 2) – пленка (среда 1)» R_{21} определяются выражениями (см., например, [13]):

$$T_{02} = \frac{n_2}{n_0} \left| \frac{4Z_0Z_1}{(Z_2 + Z_1)(Z_1 + Z_0)e^{-i\frac{\alpha}{2}} + (Z_2 - Z_1)(Z_1 - Z_0)e^{i\frac{\alpha}{2}}} \right|^2; \quad (2)$$

$$R_{21} = \left| \frac{(Z_2 + Z_1)(Z_1 - Z_0)e^{-i\frac{\alpha}{2}} + (Z_2 - Z_1)(Z_1 + Z_0)e^{i\frac{\alpha}{2}}}{(Z_2 + Z_1)(Z_1 + Z_0)e^{-i\frac{\alpha}{2}} + (Z_2 - Z_1)(Z_1 - Z_0)e^{i\frac{\alpha}{2}}} \right|^2; \quad (3)$$

где

$$Z_j = \frac{1}{m_j}; \quad \alpha = \frac{4\pi m_1 d_1}{\lambda}; \quad m_j = n_j + ik_j.$$

Для прозрачной подложки формула (1) для пропускной способности T упрощаются [12, 14, 15]:

$$T = \frac{T_{02}T_{23}}{1 - R_{21}R_{23}}. \quad (4)$$

Как видно из формулы (1), коэффициент пропускания T сложным образом (из-за интерференции излучения, отраженного от границ раздела «воздух – пленка» и «пленка – подложка») зависит от длины волны излучения λ , толщины пленки и подложки, оптических характеристик пленки и подложки. Эффект интерференции приводит к тому,

что результат измерения величины коэффициента пропускания T на длине волны λ в общем случае не определяет однозначно толщину пленки d_1 . Это вызывает необходимость разработки сложных (многоспектральных и многоугловых) методов измерения оптических характеристик пленки.

Однако в случае нанопленок (в диапазоне толщин пленки 1 – 100 нм) задача сильно упрощается, так как в этом диапазоне толщин измеренный коэффициент пропускания T однозначно (при известных показателях преломления и поглощения пленки и подложки) определяет толщину пленки. В этом случае толщину пленки можно определить непосредственно из измерений коэффициента пропускания T , численно решая (относительно d_1) задачу:

$$[T(\lambda, d_1) - T_{\text{изм}}(\lambda)]^2 \rightarrow \min, \quad (5)$$

где

$T_{\text{изм}}(\lambda)$ - измеренное значение коэффициента пропускания четырехслойной системы "вакуум (воздух) – пленка золота – кварцевая подложка - вакуум (воздух) "; $T(\lambda, d_1)$ - модельное значение коэффициента пропускания четырехслойной системы "вакуум (воздух) – пленка золота – кварцевая подложка - вакуум (воздух) ", которое определяется формулой (1).

Значение $T(\lambda, d_1)$ (см. формулу (1)) определяется показателями преломления и поглощения пленки золота и кварца, которые известны в широком спектральном интервале (от ультрафиолетового до среднего инфракрасного диапазона) [16].

Выбор наилучшей (с точки зрения обеспечения наименьшей погрешности измерений толщины пленки) длины волны излучения λ лазерного измерителя не является тривиальным: показатели преломления и поглощения золота очень сильно зависят от длины волны в видимой и инфракрасной областях спектра.

Как показали результаты исследования лазерного рефлектометрического метода [8], наиболее рациональным для диапазона измерения толщин пленок 5 – 50 нм представляется использование длины волны 515 нм, что дает возможность проводить измерения с минимально возможной погрешностью. Поэтому в статье проводится математическое моделирование для длины волны излучения 515 нм. Использование длины волны, соответствующей серийно выпускаемым лазерам, позволит разработать недорогой лазерный измеритель, подходящий для использования в технологическом оборудовании по созданию тонких металлических пленок.

Математическое моделирование

Исследование возможностей лазерного метода измерения толщины нанопленок золота на кварцевой подложке, основанного на измерении коэффициента пропускания, проводилось методом математического моделирования.

На рисунках 2 - 5 и в таблице 1 приведены результаты расчетов и математического моделирования.

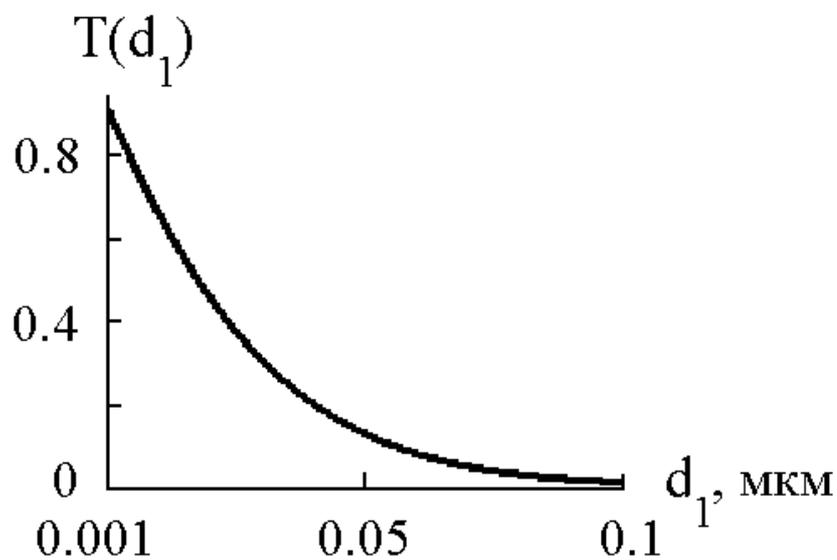


Рис. 2. Зависимость коэффициента пропускания от d для диапазона толщин 1 – 100 нм

На рисунке 2 показана зависимость коэффициента пропускания T от толщины пленки d_1 для $n_1=0,7191$, $k_1=2,0225$ (пленка из золота), $n_2=1,4616$, $k_2=0$ (подложка из кварца) в диапазоне толщин 1 – 100 нм.

Из рисунка 2 хорошо видно, что лазерный метод измерения толщины нанопленок золота на кварцевой подложке, основанный на измерении коэффициента пропускания, в принципе позволяет (используя зависимость коэффициента пропускания T от толщины пленки d_1) проводить измерения в диапазоне толщин от 1 нм до толщин ~ 50 нм и более. При этом точность определения толщины пленки по значению коэффициента пропускания будет зависеть от погрешности измерения коэффициента пропускания T (которая в свою очередь определяется крутизной функции $T(d_1)$ и шумом измерения).

При математическом моделировании формировались случайные реализации данных «измерений» коэффициента пропускания T , при этом среднеквадратическое значение погрешностей измерения T полагалось равным 1 % от $T(d_1 = 20 \text{ нм})$. Для восстановления толщины пленки по данным «измерений» проводилось численное решение уравнения (5).

На рисунке 3 для примера показана реализация восстановленного по данным «измерений» значения толщины пленки $d_{1\text{изм}}$ в зависимости от заданного значения толщины пленки d_1 в диапазоне толщин 1 – 100 нм.

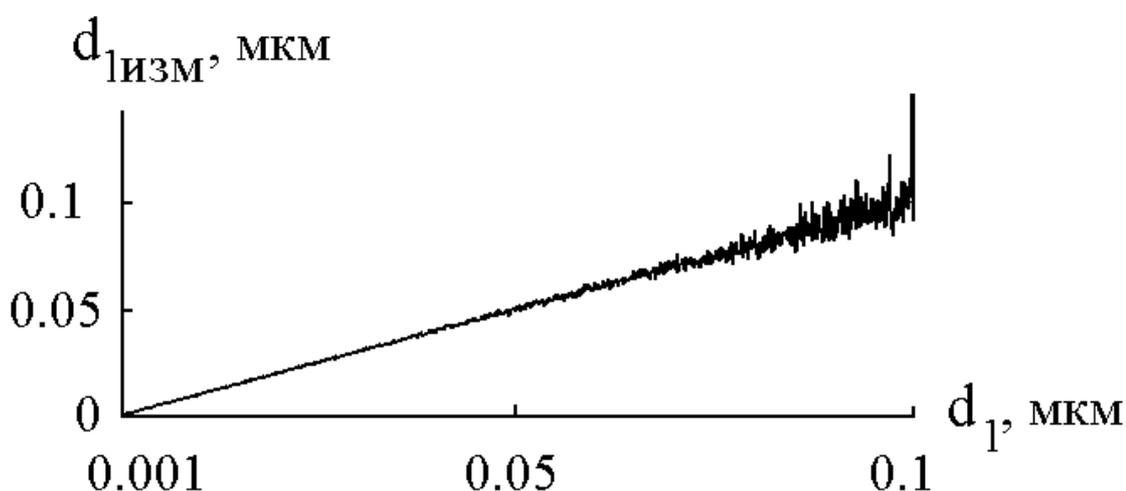


Рис. 3. Реализации восстановленного по данным «измерений» значения толщины пленки в диапазоне 1 – 100 нм

Из рисунка 3 хорошо видно, что измеренное значение толщины пленки может существенно отличаться от действительного значения толщины, особенно для пленок с толщиной свыше 50 – 60 нм.

На рисунке 4 и 5 показаны примеры случайных реализаций погрешностей восстановления (по данным «измерений») толщины пленки $\delta = \frac{|d_1 - d_{1\text{изм}}|}{d_1}$ (в относительных единицах). Для рисунка 4 диапазон толщин пленки равен 1 – 100 нм, а для рисунка 5 - 10 – 60 нм.

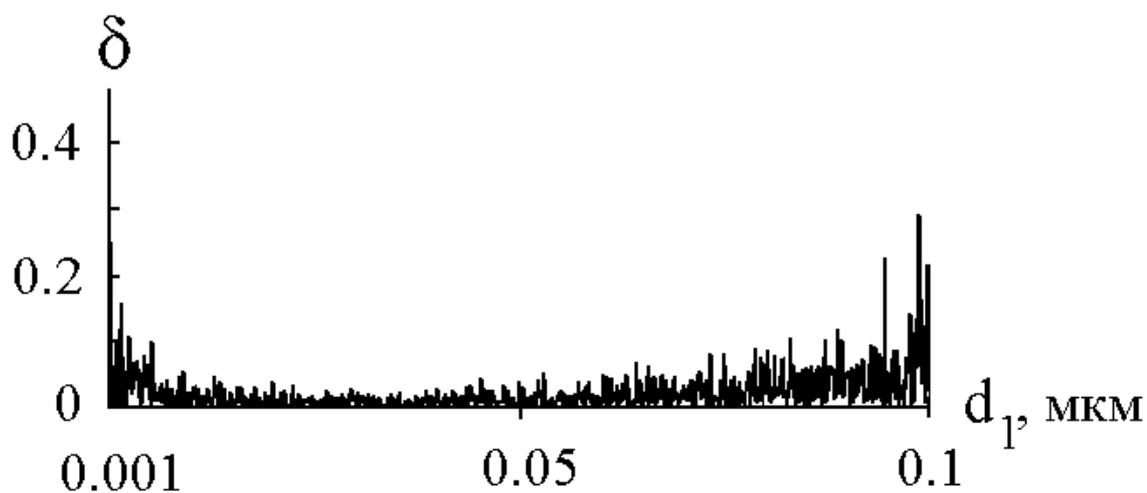


Рис. 4. Реализации погрешностей измерения толщины пленки для диапазона толщин 1 – 100 нм

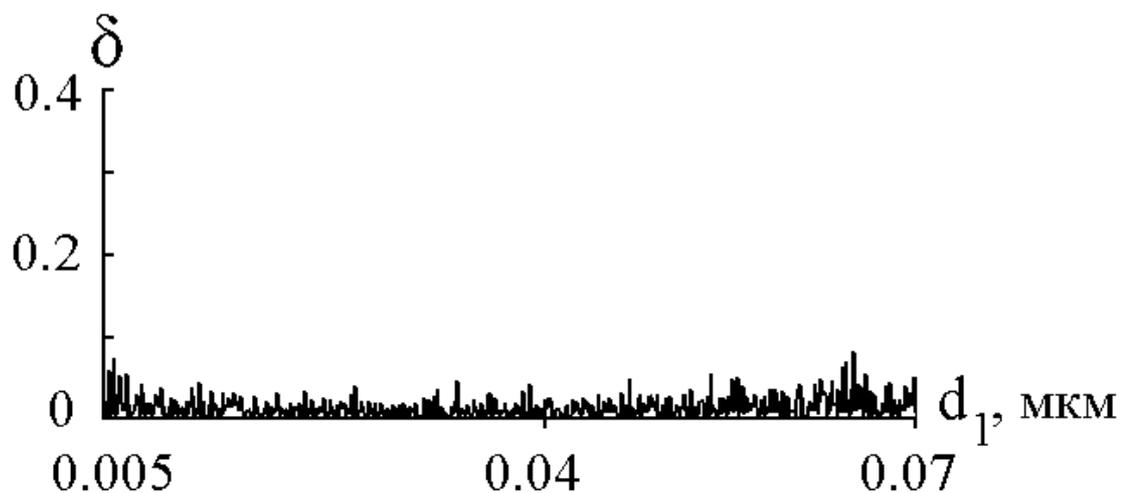


Рис. 5. Реализации погрешностей измерения толщины пленки для диапазона толщин 10 – 60 нм

В таблице 1 представлены значения $\bar{\delta}$ - средних (по интервалу указанных в соответствующих колонках измеряемых толщин и 1000 реализациям шума измерения) погрешностей δ определения толщины пленки из данных «измерений».

Средние значения погрешностей определения толщины пленки

Определяемый параметр	Интервалы усреднения погрешностей δ , мкм				
	0.001 – 0.005	0.005 – 0.009	0.02 – 0.024	0.05 – 0.054	0.096 – 0.1
$\bar{\delta}$, %	5.634	1.855	1.182	1,365	5.723

Результаты математического моделирования, приведенные на рисунках 4, 5 и в таблице 1, показывают, что лазерный метод, основанный на измерении коэффициента пропускания на длине волны излучения 515 нм, позволяет проводить определение толщины нанопленок золота на кварцевой подложке с погрешностью не более 2 % в диапазоне 5 – 70 нм. При толщине пленки менее более 70 нм погрешности измерения возрастают из-за уменьшения значения коэффициента пропускания T и крутизны функции $T(d_1)$.

Заключение

Таким образом, в статье предложен новый лазерный метод измерения толщины металлических нанопленок, основанный на измерении коэффициента пропускания четырехслойной системы «воздух (вакуум) – пленка - подложка- воздух (вакуум)» и исследованы его возможности. Показано, что при измерении коэффициента пропускания на длине волны излучения 515 нм определение толщины нанопленок золота на кварцевой подложке возможно с погрешностью не более 2 % в диапазоне толщин 5 – 70 нм.

Работа поддержана грантом РФФИ 11-02-12283-офи-м-2011.

Список литературы

1. Шульга К.В. и др. Наноструктурированные метаматериалы. Получение и характеристика // VII Международная научно-техническая конференция INTERMATIC-2010 (Москва, 23 – 27 ноября 2010 г.) : материалы. М.:МИРЭА, 2010. Ч. 2. С. 11-12.
2. Егоров А.А. Внутрикамерная диагностика методом рентгеновской рефлектометрии параметров наноразмерных плёнок напыляемых магнетронным методом в режиме осаждения кластеров // Труды X межвузовской научной школы молодых специалистов "Концентрированные потоки энергии в космической технике электронике, экологии и медицине" (Москва, 23-24 ноября 2009 г.). Режим доступа: http://nuclphys.sinp.msu.ru/school/s09/09_04.pdf (дата обращения 20.06.2012).

3. Baranov A.M., Kondrashov P.E., Smirnov I.S. In situ x-ray reflectivity for thin -film deposition monitoring and control // *Solid State Technology*. 1999, no. 5. P. 53-58.
4. Попов Н.Л., Успенский Ю.А., Турьянский А.Г., Пиршин И.В., Виноградов А.В., Платонов Ю.Я. Определение параметров многослойных наноструктур с помощью двухволновой рентгеновской рефлектометрии // *Физика и техника полупроводников*. 2003. Т. 37, вып. 6. С. 700-705.
5. Beaudoin Y., Chaker M., Johnston T.W., Pepin H. Laser reflectometry in situ measurement of lead zirconate titanate film growth // *Applied optics*. 1997. Vol. 36, no. 3. P. 655-657.
6. Babeva T., Kitova S., Konstantinov I. Photometric methods for determining the optical constants and the thicknesses of thin absorbing films: criteria for precise and unambiguous determination of n, k, and d in a wide spectral range // *Applied Optics*. 2001. Vol. 40, no. 16. P. 2682-2686.
7. Белов М.Л., Белов А.М., Городничев В.А., Козинцев В.И., Федотов Ю.В. Лазерный рефлектометрический метод измерения толщины и оптических характеристик тонких пленок в процессе их роста // *Вестник МГТУ им. Н.Э. Баумана. Сер. Приборостроение*. 2011. № 2. С.16-24.
8. Городничев В. А., Белов М. Л., Белов А. М., Березин С. В., Федотов Ю. В. Лазерный рефлектометрический метод измерения толщины нанопленок золота на кварцевой подложке // *Наука и образование. МГТУ им. Н.Э. Баумана. Электрон. журн*. 2012. № 3. Режим доступа: <http://technomag.edu.ru/doc/326698.html> (дата обращения 20.06.2012).
9. Jung C., Rhee V.K. Simultaneous determination of thickness and optical constants of polymer thin film by analyzing transmittance // *Applied Optics*. 2002. Vol. 41, no. 19. P. 3861-3865.
10. Chambouleyron I., Martinez J.M., Moretti A.C., Mulato M. Retrieval of optical constants and thickness of thin films from transmission spectra // *Applied Optics*. 1997. Vol. 36, no. 31. P. 8238-8247.
11. Cisneros J.I. Optical characterization of dielectric and semiconductor thin film by use of transmission data // *Applied Optics*. 1998. Vol. 37, no. 22. P. 5262-5270.
12. Wang Y., Miyagi M. Simultaneous measurement of optical constants of dispersive material at visible and infrared wavelengths // *Applied Optics*. 1997. Vol. 36, no. 4. P. 877-884.
13. Бреховских Л.М. Волны в слоистых средах. М.: Изд-во АН СССР, 1957. 503 с.
14. Коновалов О.П., Шаганов И.И. Определение оптических констант слабопоглощающих слоев на прозрачной подложке // *Оптико-механическая промышленность*. 1988. № 8. С. 39-41.
15. Pekker D., Pekker L. A method for determining thickness and optical constants of absorbing thin films // *Thin Solid Films*. 2003. Vol. 425. P. 203-209.
16. RefractiveIndex.INFO. Режим доступа: <http://refractiveindex.info> (дата обращения 17.12.2012).

Laser method of determining thickness of gold nanofilms on a quartz substrate, based on measurement of the transmittance

12, December 2012

DOI: [10.7463/1212.0507361](https://doi.org/10.7463/1212.0507361)

Gorodnichev V.A., Belov M.L., Fedotov Yu.V.

Russia, Bauman Moscow State Technical University

belov@bmstu.ru

ekomonit@bmstu.ru

gorod@bmstu.ru

The article covers a laser method of measuring thickness of thin metal films on a transparent insulating substrate, based on the measurement of transmittance of a four-layer system "air (vacuum) - metal film - insulating base - air (vacuum)." Mathematical modeling results show that when measuring transmittance of a four-layer system "air (vacuum) - metal film - insulating base - air (vacuum)" at the wavelength of 515 nm, thickness determination of gold nanofilms on a quartz substrate is possible to a precision of not more than 2% in the film thickness range of 5 – 70 nm.

Publications with keywords: [laser](#), [measurement of film thickness](#), [gold film](#), [quartz substrate](#), [transmission coefficient](#)

Publications with words: [laser](#), [measurement of film thickness](#), [gold film](#), [quartz substrate](#), [transmission coefficient](#)

References

1. Shul'ga K.V., Chernykh I.A., Grishchenko Iu.V., Roddatis V.V. Nanostrukturirovannye metamaterialy. Poluchenie i kharakterizatsiia [Nanostructured metamaterials. Obtaining and characterizations]. 7 *Mezhdunarodnaia nauchno-tekhnicheskoi konferentsiia INTERMATIC-2010* ["Fundamental Problems of Electronic Instrumentation" (INTERMATIC-2010). Proc. 7th Int. Sci.-Tech. Conf.]. Moscow, MIREA Publ., 2010, pt. 2, pp. 11-12.
2. Egorov A.A. Vnutrikamernaia diagnostika metodom rentgenovskoi reflektometrii parametrov nanorazmernykh plenok napyliayemykh magnetronnym metodom v rezhime osazhdeniia klasterov [Intrachamber X-ray reflectometry diagnosis of the parameters of nanoscale film sprayed by magnetron method in cluster deposition mode]. *Trudy 10 mezhvuzovskoi nauchnoi shkoly molodykh spetsialistov "Kontsentrirovannye potoki energii v kosmicheskoi tekhnike elektronike, ekologii i meditsine"* [Proceedings of 10th inter-university scientific school of young specialists "Concentrated energy flows in space engineering, electronics, ecology, and

medicine”]. Moscow, 23-24 November 2009. Available at: http://nuclphys.sinp.msu.ru/school/s09/09_04.pdf , accessed 20.06.2012.

3. Baranov A.M., Kondrashov P.E., Smirnov I.S. In situ x-ray reflectivity for thin -film deposition monitoring and control. *Solid State Technology*, 1999, vol. 42, no. 5, pp. 53-58.
4. Popov N.L., Uspenskii Iu.A., Tur'ianskii A.G., Pirshin I.V., Vinogradov A.V., Platonov Iu.Ia. Opredelenie parametrov mnogosloinykh nanostruktur s pomoshch'iu dvukhvolnovoi rengenovskoi reflektometrii [Defining the parameters of multilayer nanostructures using two-wave X-ray reflectometry]. *Fizika i tekhnika poluprovodnikov*, 2003, vol. 37, no. 6, pp. 700-705.
5. Beaudoin Y., Chaker M., Johnston T.W., Pepin H. Laser reflectometry in situ measurement of lead zirconate titanate film growth. *Applied Optics*, 1997, vol. 36, no. 3, pp. 655-657.
6. Babeva T., Kitova S., Konstantinov I. Photometric methods for determining the optical constants and the thicknesses of thin absorbing films: criteria for precise and unambiguous determination of n, k, and d in a wide spectral range. *Applied Optics*, 2001, vol. 40, no. 16, pp. 2682-2686.
7. Belov M.L., Belov A.M., Gorodnichev V.A., Kozintsev V.I., Fedotov Iu.V. Lazernyi reflektometricheskii metod izmereniia tolshchiny i opticheskikh kharakteristik tonkikh plenok v protsesse ikh rosta [Laser OTDR method for measuring the thickness and optical properties of thin films during their growth]. *Vestnik MGTU im. N.E. Baumana. Ser. Priborostroenie* [Herald of the Bauman MSTU. Ser. Instrumentation Engineering], 2011, no. 2, pp. 16-24.
8. Gorodnichev V.A., Belov M.L., Belov A.M., Berezin S.V., Fedotov Iu.V. Lazernyi reflektometricheskii metod izmereniia tolshchiny nanoplenok zolota na kvartsevoi podlozhke [Laser reflectometry method of measurement of thickness of gold nanofilms on quartz substrate]. *Nauka i obrazovanie MGTU im. N.E. Baumana* [Science and Education of the Bauman MSTU], 2012, no. 3. Available at: <http://technomag.edu.ru/doc/326698.html> , accessed 20.06.2012.
9. Jung C., Rhee B.K. Simultaneous determination of thickness and optical constants of polymer thin film by analyzing transmittance. *Applied Optics*, 2002, vol. 41, no. 19, pp. 3861-3865.
10. Chambouleyron I., Martinez J.M., Moretti A.C., Mulato M. Retrieval of optical constants and thickness of thin films from transmission spectra. *Applied Optics*, 1997, vol. 36, no. 31, pp. 8238-8247.
11. Cisneros J.I. Optical characterization of dielectric and semiconductor thin film by use of transmission data. *Applied Optics*, 1998, vol. 37, no. 22, pp. 5262-5270.
12. Wang Y., Miyagi M. Simultaneous measurement of optical constants of dispersive material at visible and infrared wavelengths. *Applied Optics*, 1997, vol. 36, no. 4 pp. 877-884.
13. Brekhovskikh L.M. *Volny v sloistykh sredakh* [Waves in stratified medium]. Moscow, AS USSR Publ., 1957. 503 sp
14. Konovalov O.P., Shaganov I.I. Opredelenie opticheskikh konstant slabopogloshchaiushchikh sloev na prozrachnoi podlozhke [Determination of optical constants of weakly absorbing layers on a transparent substrate]. *Optiko-mekhanicheskaiia promyshlennost'* [Optomechanical industry], 1988, no. 8, pp. 39-41.
15. Pekker D., Pekker L. A method for determining thickness and optical constants of absorbing thin films. *Thin Solid Films*, 2003, vol. 425, pp. 203-209.
16. *RefractiveIndex.INFO*. Available at: <http://refractiveindex.info> , accessed 17.12.2012.