

ОПТИКА И СПЕКТРОСКОПИЯ

УДК 535.3;535.512;533.9

ЭКСПРЕСС-МЕТОД ОЦЕНКИ ТОЛЩИН НАНОМЕТРОВЫХ ПЛЕНОК-МИШЕНЕЙ И ЕГО ПРИМЕНЕНИЕ В ЭКСПЕРИМЕНТАХ ПО ГЕНЕРАЦИИ ПИКОСЕКУНДНОГО РЕНТГЕНОВСКОГО ИЗЛУЧЕНИЯ**В. М. Гордиенко, А. Б. Савельев, А. А. Шашков***(кафедра общей физики и волновых процессов)*

Разработан экспресс-метод для определения толщины нанометровой диэлектрической пленки с точностью $\pm 2-3$ нм, представляющий собой модификацию эллипсометрического метода и основанный на измерении угла Брюстера при прохождении света через систему пленка-подложка. Полученные результаты использованы в экспериментах по эффективной генерации мягкого рентгеновского излучения в свободновисящих сверхтонких пленках под действием лазерного импульса с интенсивностью 10^{16} Вт/см².

Введение

При воздействии сверхинтенсивного (более 10^{15} Вт/см²) фемтосекундного лазерного излучения на твердотельную мишень на ее поверхности образуется тонкий слой фемтосекундной лазерной плазмы (ФЛП) [1–5]. Плазма имеет высокую электронную плотность (до 10^{24} см⁻³) и температуру ($T_e > 100$ эВ), время жизни порядка 1 пс и высокую степень ионизации атомов. Плазма является источником мощных коротких импульсов некогерентного рентгеновского излучения, спектр и мощность которых определяются в основном температурой, плотностью электронов в плазме и ионизационным составом плазмы, а их длительность (порядка нескольких пикосекунд) существенно зависит от скорости ее остывания [4].

Эти импульсы могут быть использованы для проведения микроскопических, спектральных и иных исследований вещества с уникально высоким временным разрешением [4, 6]. В частности, для создания источников некогерентного рентгеновского излучения в области «водяного окна» (2–4 нм) перспективным оказывается использование мишеней особого типа — сверхтонких свободновисящих пленок нанометровой толщины [5, 7, 8].

Как показали расчеты, свойства образующейся фемтосекундной лазерной плазмы сильно зависят от толщины пленки-мишени [7, 9]. Использование сверхтонких (толщиной порядка десятков нанометров) свободновисящих пленок позволяет поднять температуру образующейся плазмы, а значит, и выход рентгеновского излучения без изменения параметров лазерного импульса: в такой пленке отсутствует отток тепла в толщу мишени, связанный с электронной теплопроводностью. Из этих же расчетов следует, что при уменьшении толщины пленки от 50 до 25 нм выход рентгеновского излучения возрастает почти в два раза [9]. Таким образом, в экспериментах необходимо было иметь информацию

о толщине используемой пленки с точностью до нескольких нанометров.

Целью настоящей работы была разработка простой в реализации экспресс-методики определения толщины пленки-мишени, представляющей собой модификацию эллипсометрического метода. Эта методика основана на измерении угла Брюстера при прохождении излучения через систему пленка-подложка, она позволяет измерять толщину пленки с точностью $\pm 2-3$ нм. Пленки-мишени, измеренные нашим методом, применялись в экспериментах по взаимодействию сверхинтенсивного лазерного излучения с тонкопленочной мишенью.

1. Эллипсометрия тонких пленок

Эллипсометрия представляет собой исследование изменения состояния поляризации пучка света в результате его отражения от исследуемого объекта [10, 11]. В общем случае при отражении линейно поляризованного света с произвольной ориентацией плоскости поляризации наблюдается его превращение в эллиптически поляризованный в силу зависимости коэффициента отражения от состояния поляризации. Ориентация эллипса поляризации и его размеры несут в себе информацию о поверхностном слое отражающего материала, в частности о параметрах пленки, покрывающей его. Эллипсометрический метод исследования имеет ряд очень важных особенностей, которые делают его весьма привлекательным. Во-первых, это не только неразрушающий, но и невозмущающий метод исследования [10]. Во-вторых, при использовании современных технических средств эллипсометрия дает возможность проводить исследование состояния поверхности, структуры тонких поверхностных пленок и явлений на границе двух фаз [12–15]. Так, например, в работах [14, 15] были предложены различные варианты эллипсометрического метода, позволяющие измерять показатели преломления и толщины сверхтонких пленок (вплоть до 1,5–2 нм) с точностью до третьего знака после запя-

той, а в работах [12, 13] исследовались разные виды адсорбции газов на поверхности кремния и германия. Наконец, эллипсометрические измерения могут проводиться в широком интервале температур и давлений, причем состояние (например, агрессивность) окружающей среды не является помехой. Эллипсометрия также может применяться для исследования поглощающих пленок [16].

Использование эллипсометрии для измерения оптических характеристик тонких пленок в общем виде представляет собой достаточно сложную экспериментальную задачу. Задача существенно упрощается в частном случае отражения *p*-поляризованного света, при котором состояние поляризации не меняется. При использовании такого излучения для измерения толщины оказывается достаточно определять угол минимального коэффициента отражения (угол Брюстера) для системы пленка–подложка, что заметно упрощает измерение.

С целью определения коэффициента отражения излучения от системы пленка–подложка (рис. 1, *a*) нами были рассчитаны зависимости коэффициентов отражения для *p*- и *s*-поляризованного света от толщины пленки и угла падения для системы воздух–пленка–подложка.

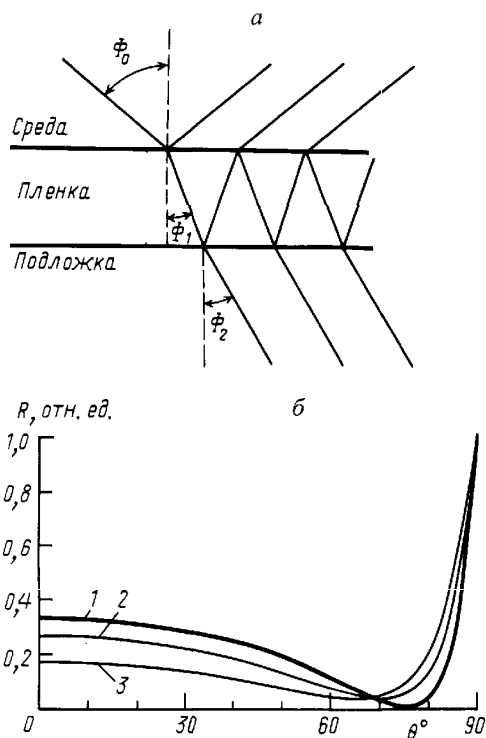


Рис. 1. *a* — Схема хода лучей в системе среда–пленка–подложка (для воздуха показатель преломления $n = 1$, для пленки углерода $n = 2,4$, для подложки $n = 1,49$ (KCl) или $n = 3,81$ (Si)) [17]. *b* — Зависимость коэффициента отражения *p*-поляризованного излучения *R* от угла падения θ при фиксированной толщине пленки: $d = 10$ (1), 25 (2) и 40 нм (3)

Расчитанные зависимости коэффициента отражения *p*-поляризованного излучения от угла падения для пленок толщиной 10, 25 и 40 нм, напыленных на кремниевую подложку (рис. 1, *b*), показывают, что при некотором значении этого угла коэффициент от-

ражения достигает минимального значения, которое зависит от толщины пленки.

На рис. 2 показана рассчитанная зависимость угла Брюстера ϕ от толщины пленки d для двух разных подложек (KCl и Si). Следует отметить, что эти зависимости периодичны, следовательно, для определения толщины пленки по величине измеренного угла Брюстера необходима предварительная оценка толщины, позволяющая выбрать соответствующий участок на зависимости ϕ от d . Такая оценка может быть сделана, например, исходя из условий напыления пленки (время напыления, энергия распыляющих импульсов и др.). Точность определения угла Брюстера порядка $0,5^\circ$ позволяет определять толщину пленки с погрешностью не более 2 нм. Разные фазы осцилляций коэффициента отражения для KCl и Si связаны с разными соотношениями показателей преломления в системе пленка–подложка ($n_{\text{KCl}} < n_{\text{C}}$, а $n_{\text{Si}} > n_{\text{C}}$).

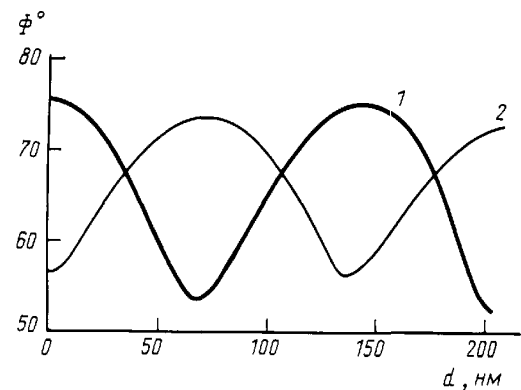


Рис. 2. Зависимость угла Брюстера ϕ от толщины углеродной пленки d на подложке из Si (1) и KCl (2)

2. Измерение толщины сверхтонких пленок

Технология изготовления свободновисящей пленки нанометровой толщины подразумевает использование в качестве исходной подложки водорастворимого кристалла (KCl): углерод напыляется на кристалл, затем подложка с пленкой опускается в воду, при этом пленка всплывает. После этого под пленку подводится медная сетка, которая вынимается из воды вместе с пленкой. В результате в ячейках сетки оказывается свободновисящая пленка, которая и используется в качестве мишени.

Однако для эллипсометрических измерений кристалл KCl неудобен вследствие неровности поверхности, полученной методом скола. Для проведения эллипсометрических измерений лучше подходят шайбы кремния, полученные при химико-динамической полировке поверхности.

Для определения угла Брюстера была собрана установка, схема которой изображена на рис. 3. Установка состоит из гониометра, на котором устанавливаются исследуемый образец и лавинный фотодиод, регистрирующий отраженное излучение He-Ne-лазера, прерывателя, системы призм и линз, направляющих излучение на образец, и поляризатора, позволяющего изменять состояние поляризации падающего излучения. При повороте столика с образцом

на угол θ фотодиод поворачивается на угол 2θ , отслеживая тем самым отраженный луч. Сигнал с фотодиода поступает на осциллограф, измеряющий его амплитуду. Нами измерялась зависимость коэффициента отражения от угла и определялся его минимум. Степень деполяризации использованного нами излучения не превышала 1%. Таким методом можно легко определять значение угла Брюстера с точностью до $0,5^\circ$.

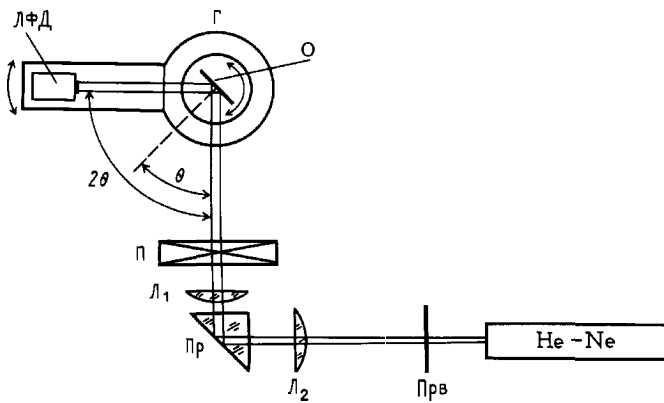


Рис. 3. Схема эллипсометра: Г — гониометр, ЛФД — лавинный фотодиод, О — образец, П — поляризатор, Л₁ и Л₂ — линзы, Пр — призма, Прв — прерыватель, He-Ne — лазер

Дальнейшие измерения проводились следующим образом.

1. Сначала исследовалась чистая подложка без пленки. Изменялась зависимость ее коэффициента отражения от угла падения (рис. 4). После этого определялись мнимая и действительная части показателя преломления, для которых положение минимума расчетной зависимости совпадает с экспериментом. В качестве начальных принимались табличные значения параметров [17].

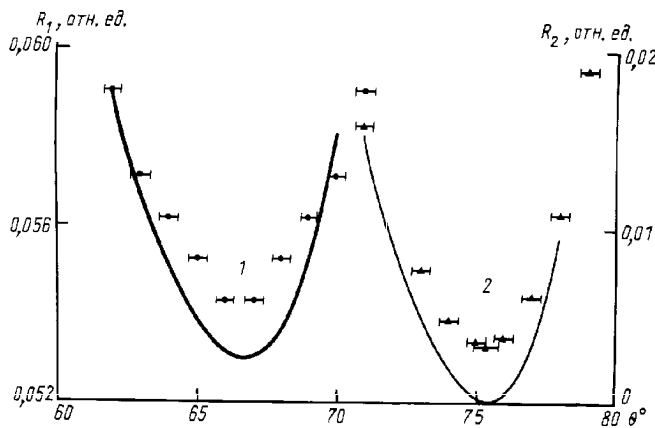


Рис. 4. Зависимость коэффициента отражения R от угла падения θ для кремния с напыленной пленкой углерода (точки — эксперимент, кривая — расчет, соответствующий пленке толщиной 38 нм) — 1 и для чистого кремния (точки — эксперимент, кривая — расчет) — 2

2. На следующем этапе проводились аналогичные процедуры для образца с напыленной пленкой (см. рис. 4). При подгонке экспериментальных и расчетных зависимостей варьировалась только толщина пленки, а в качестве показателя преломления использовалось его табличное значение [17].

В результате измерений выяснилось, что разным точкам на поверхности кристалла с пленкой соответствуют разные значения угла Брюстера. Это может быть связано с некоторой неоднородностью пленки. Изменение толщины пленки в пределах одного кристалла не превышает 10%, что подтверждается исследованиями с помощью стандартного профилометра. Для определения средней толщины пленки следует пользоваться «широким пучком», сглаживающим неоднородности толщины.

При проведении профилометрических измерений пленка углерода напылялась на подложку из кремния, часть которой затенялась экраном в процессе напыления. В результате получалась ступенька, образованная углеродной пленкой. Поверхность пленок имела шероховатости высотой в 2–3 нм при продольном размере порядка 100 нм, что соответствовало результатам эллипсометрических измерений.

Результаты определения толщин пленок с помощью профилометра и эллипсометра приведены на рис. 5. Очевидно удовлетворительное соответствие результатов для пленок толщиной до нескольких десятков нанометров.

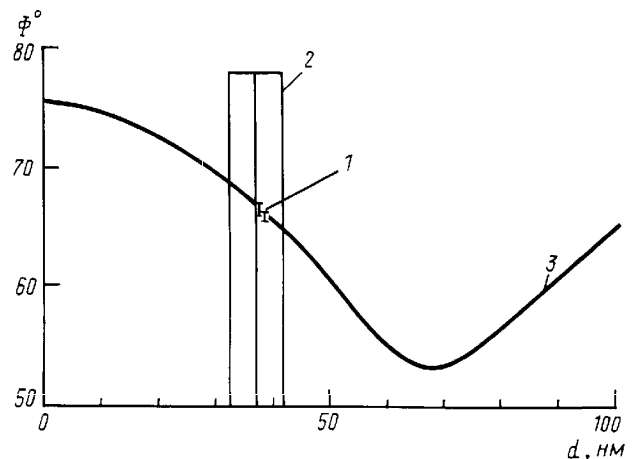


Рис. 5. Результаты эллипсометрии (экспериментальные точки 1) и профилометрии (прямоугольник 2); расчетная зависимость угла Брюстера ϕ от толщины углеродной пленки d (3)

3. Применение разработанной методики в экспериментах

Разработанная методика использовалась нами для измерения толщины пленок-мишеней в экспериментах по взаимодействию сверхинтенсивного фемтосекундного лазерного излучения со сверхтонкими (10 ÷ 100 нм) свободновисящими пленками углерода [8].

Эксперименты проводились на установке сверхсильного светового поля [8]. Излучение (длительность импульса 200 фс, длина волны 600 нм) фокусировалось линзой с фокусным расстоянием 11 см в пятно диаметром 7 ÷ 10 мкм, в результате интенсивность в фокусе достигала $5 \cdot 10^{14} \div 2 \cdot 10^{15}$ Вт/см².

В процессе экспериментов мы регистрировали с помощью pin-диода мягкое рентгеновское излучение (300 ÷ 1000 эВ), возникавшее в плазме. Это позволяло

провести расчет эффективности конверсии — отношения энергии рентгеновского излучения плазмы к энергии лазерного импульса.

Результаты этих экспериментов совместно с данными о толщине пленок, полученными согласно развитой нами методике, сведены в таблицу.

Толщина мишени, нм	Эффективность конверсии: эксперимент (расчет), %	Температура плазмы, эВ
1000	$0,18 \pm 0,02$ (0,19)	150
50	$0,37 \pm 0,06$ (0,4)	300
40	$0,58 \pm 0,09$ (0,41)	350
25	$0,63 \pm 0,09$ (0,47)	420
10	$0,15 \pm 0,02$ (0,23)	700

При уменьшении толщины пленки выход рентгеновского излучения в области энергий квантов от 200 до 1000 эВ сначала возрастает в соответствии с расчетом [9], а для мишени с толщиной 10 нм резко падает. Это падение связано в первую очередь с «перегревом» тонкой пленки до температур, при которых плазма состоит в основном из полностью ионизованных ионов ($Z = 6$) и рекомбинационные процессы подавлены, кроме того, при столь высоких температурах скорость разлета плазмы высока, следовательно, плазма быстро расширяется и рекомбинация происходит уже в достаточно разреженной плазме, что существенно снижает эффективность высвечивания [8].

Таким образом, нами разработан экспресс-метод контроля толщины диэлектрических пленок, который применен для оценки толщины пленки углерода. Показано, что по значениям угла Брюстера для тонкой пленки, лежащей на поверхности кристалла, и угла Брюстера для чистого образца можно оценить толщину диэлектрической пленки в диапазоне $5 \div 50$ нм с точностью $2 \div 5$ нм.

Этот метод может применяться для определения толщины любых диэлектрических пленок, нанесенных на подложку, причем подложка необязательно должна быть диэлектриком.

Развитый метод применялся при оценке толщин мишеней, использованных в экспериментах по взаимодействию фемтосекундного лазерного импульса со сверхтонкими ($10 \div 100$ нм) свободновисящими пленками углерода. Результаты проведенных экспе-

риментов подтвердили правильность нашего метода измерения толщины пленок углерода.

Работа выполнена при поддержке РФФИ (гранты 96-02-19146 и 99-02-18343).

Литература

1. *Falcone R.W., Murnane M.M.* // Proc. of American Institute of Physics. N. Y.: AIP, 1986. V. 147. P. 81.
2. Мощные пико- и фемтосекундные лазерные системы; вещество в сверхсильных световых полях / Под ред. С.А. Ахманова // Итоги науки и техники. Сер. Современные проблемы лазерной физики. Т. 4. М.: ВИНТИ, 1991.
3. *Gibbon P., Forster R.* // Plasma Phys. Control. Fusion. 1996. **38**. P. 769.
4. *Gordienko V.M., Savel'ev A.B.* // Opt. Eng. Bulletin. 1995. No. 1. P. 8.
5. *Гордиенко В.М., Джиджоев М.С., Колчин В.В.* и др. // Квант. электроника. 1995. **22**, №2. С. 157.
6. *Barty Ch.P., Raksi F., Rose-Petruck Ch.G.* et. al. // SPIE Proc. 1995. **2521**. P. 246.
7. *Dzhidzhoev M.S., Gordienko V.M., Kolchin V.V.* et. al. // J. Opt. Soc. Am. 1996. **B13**, No. 1. P. 143.
8. *Волков Р.В., Гордиенко В.М., Джиджоев М.С.* и др. // Квант. электроника. 1997. **24**, №12. С. 1114.
9. *Gordienko V.M., Joukov M.A., Savel'ev A.B.* // Applications of High Field and Short Wavelength Sources / Ed. L. Di Mauro, M. Murnane, A. L'Huillier. N. Y.: Plenum Press, 1998. P. 155.
10. *Аззам Р., Башара Н.* Эллипсометрия и поляризованный свет. М.: Мир, 1981.
11. *Ржанов А.В., Свитаев К.К., Семенов А.И.* et al. Основы эллипсометрии. М.: Наука, 1979.
12. *Archer R.J., Goberli G.W.* // J. Phys. Chem. Solids. 1965. **26**. P. 343.
13. *Bootsma G.A., Meyer F.* // Surf. Sci. 1969. **16**. P. 110.
14. *Шкляревский Н.И., Эль-Шазли А.Ф.А., Идчак Е.* // Опт. и спектр. 1972. **33**. С. 1157.
15. *Егорова Г.А., Иванова Н.С., Потанов Е.В., Раков А.В.* // Опт. и спектр. 1974. **36**, №4. С. 773.
16. *Семенов Л.В., Свитаев К.К., Семенов А.И., Соколов В.К.* // Опт. и спектр. 1972. **32**, №6. С. 1204.
17. Таблицы физических величин: Справочник / Под ред. И.К. Кикоина. М.: Атомиздат, 1976. С. 638–639.

Поступила в редакцию
08.09.99