

2層構造の光学特性と厚さの分析

Agilent Cary 5000 と UMA アクセサリによる屈折率と膜厚の測定



著者

Kozlova N.S., Kozlova A.P.,
Zabelina E.V., Goreeva Zh.A.,
Didenko I.S.¹

¹Laboratory “Single crystals
and Stock on their Base”
NUST “MISiS”, Moscow,
Russia

はじめに

多層光学コーティングは、紫外線から赤外線までの光の特性を利用する技術分野で普及しています (1)。光学コーティングの設計および製造で成功を得るには、屈折率、吸光係数、積層薄膜構造の厚さに関する高品質な情報が求められます。

薄膜構造の特性を適切に研究するためには、非破壊的な方法を用いることが好まれます。積層薄膜構造の特性解析のための基本的なアプローチは、バルク材料の光学特性解析の方法とは根本的に異なります。薄膜の光学特性は、通常、試料から反射される光の偏光状態の分析に基づく光学的技法であるエリプソメトリーを用いて評価します。現在、代替手法として、多角度分光光度法という多目的の非破壊光学技法があります (2、3)。

アクセサリを取り付けた分光光度計で、入射偏光の反射率および透過率のスペクトルおよび角度を測定できます。

ただし、光学パラメータは、以下に示すものに大きく依存します。

- 基板および薄膜の成長条件
- 薄膜の均質性
- 基板の均質性、および
- 光学特性、(4、5)

このため、構造寿命まで薄膜の均質性が維持されることが期待されています。

今回の研究の目的は、Agilent Cary 5000 分光光度計と、独自の自動化された多角度可変自動測定アクセサリ (UMA) を用いて、薄膜のパラメータとして、厚さ (d)、屈折率 (n)、吸収係数 (k) を測定することです。

実験方法

Cary 5000 分光光度計と UMA を組み合わせることにより、以下の測定を自動かつ無人で実行することが可能です。

- 最小ステップ間隔 0.02 °で、絶対反射率 R (5 ~ 85 °の入射角) および透過率 T (0 ~ 85 °の入射角)
- 1 回の測定シーケンス内でさまざまな角度および偏光での T および R の測定値
- 非偏光での 190 ~ 2800 nm の測定波長範囲、
- s 偏光と p 偏光での 250 ~ 2500 nm の波長範囲

このように、サンプルを移動せずに、サンプルの詳細を得ることができます。Cary 5000 と UMA の組み合わせは、多様なコンソール、交換および再構成が不要な多角度可変自動測定システムです。高品質データを提供し、サンプルの 1 つの領域からすべての特性を測定できます。このアクセサリの大きな利点は、サンプルの同じ領域をさまざまな入射光の角度で入射光の偏光を変化させて、光学特性を測定できる機能です。UMA は、固定光源、360 °回転可能なサンプルホルダ、独立した検出器で構成されます。検出器はサンプルの回りを水平面上で移動できます。

薄膜の屈折率と厚さは、2 つの角度の入射光を使用して特性解析されます (6)。この方法は、薄膜が透明であるか、無視できるほど吸収が低い場合のスペクトル範囲にのみ適しています。

結果と考察

基板の種類が異なる (可視光領域で透明または不透明な) 2 つのサンプルを特性解析しました。具体的には、石英基板 (可視領域で透明) 上のナノコンジットコーティング Zr-Si-B-(N) 膜 (7) および (001) 単結晶シリコン基板 (可視光領域で不透明) 上の積層ニオブ酸リチウム LiNbO_3 構造の試料です (8、9)。

どちらの構造も、高周波マグネトロンスパッタリングを使用して成長させます。光を透過させる基板の機能は、この方法で測定されるパラメータの選択に影響を与えます。透明な基板では透過率を使用でき、不透明な基板では反射率を使用できます。

最初のサンプルの厚さ (d) 測定では 2 つの任意の異なる非偏光入射角で、今回は、垂直入射 $\phi_1 = 0^\circ$ と $\phi_2 = 20^\circ$ で透過率スペクトルを得ました (図 1)。

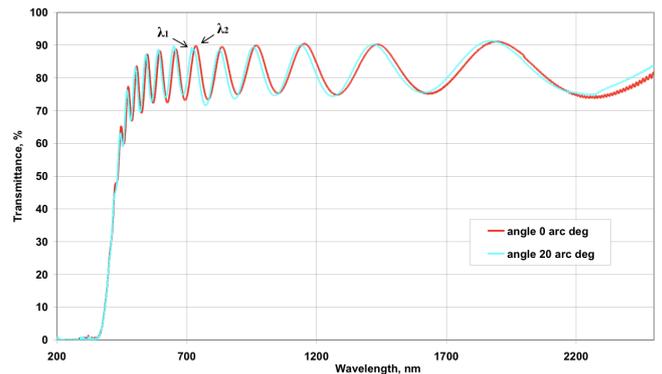


図 1. 垂直入射 (λ_2) と 20° (λ_1) での石英基板上のナノコンジットコーティング Zr-Si-B-(N) 膜の透過率スペクトル

スパッタリングされた層の屈折率を評価するために、スペクトル反射依存性を $\phi_1 = 6^\circ$ と $\phi_2 = 20^\circ$ の 2 つの異なる非偏光入射角で記録して使用しました (図 2)。

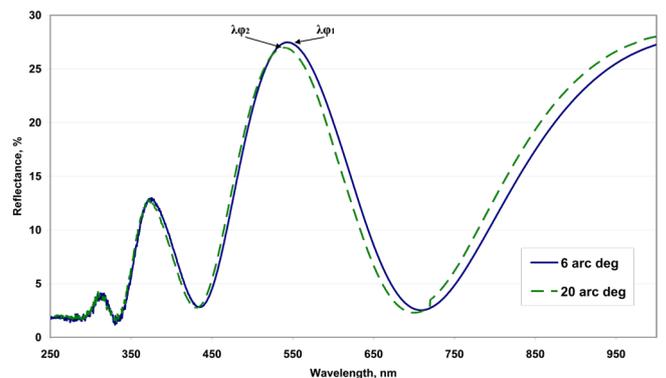


図 2. シリコン基板上の LiNbO_3 構造試料の 2 つの入射角 (6° と 20°) における反射スペクトル

得られたスペクトルで、入射角 ϕ_1 と ϕ_2 における同じ干渉ピークに相当する波長 λ_{ϕ_1} と λ_{ϕ_2} をそれぞれ選択し、次の式より薄膜の反射率を求めます (6)。

$$\left(\frac{n}{n_0}\right)^2 = \frac{\sin^2 \phi_1 - \beta \sin^2 \phi_2}{1 - \beta},$$

ここで、 n_0 は媒体の屈折率 (ここでは大気で、 $n_0=1$)、 β は次の式で求められる係数です。

$$\beta = \left(\frac{\lambda_{\phi_1}}{\lambda_{\phi_2}}\right)^2,$$

最初の式を使用して計算した薄膜の屈折率 n は、両方のサンプルについてそれぞれ、表 1 および 2 にまとめます。

薄膜の光学的厚さ dn は、次の式を使用し同じ光の入射角 (2つの入射角の低い方) で、隣接した干渉の最大の位置 λ_1 と λ_2 を基に計算しました (6)。

$$d \cdot n = \frac{\lambda_1 \cdot \lambda_2}{4(\lambda_2 - \lambda_1)},$$

測定された膜厚は、薄膜の光学的厚さ dn を屈折率 n で割って、 $250 \text{ nm} \pm 30 \text{ nm}$ となりました。残念なことは、この手法を使用して求める反射率はピーク波長の測定精度に非常に影響されやすいことです。したがって、この方法は、初期の近似値の選択を目的とした屈折率の予備的な推定に適しています。

これらの薄膜は不均質な構造をしており、これは光学顕微鏡による検査で検出されました。この不均質性は、値 n の測定精度に表れます。薄膜の n の測定精度は、0,01 より劣っていません。

表 1. 石英基板上的の Zr-Si-B-(N) 膜で得られた結果

λ_{ϕ_1} (20°), nm	λ_{ϕ_2} (0°), nm	n	d , nm
470	474	2.64	1380 ± 5 %
502	507	2.44	
590	596	2.42	
650	657	2.35	
725	733	2.32	
824	834	2.22	
883	895	2.20	
955	966	2.17	
1037	1050	2.17	

表 2. 単結晶シリコン基板上的の積層 LiNbO₃ 構造で得られた結果

λ_{ϕ_1} (6°), nm	λ_{ϕ_2} (20°), nm	n	d , nm
543.62	539.25	2.58	250 ± 5 %
708.83	700.12	2.09	

得られた結果を基に、石英基板上的のナノコンポジットコーティング Zr-Si-B-(N) 膜およびシリコン基板上的の LiNbO₃ 構造試料の屈折率の分散曲線を作成しました。それぞれ図 3 および 4 を参照してください。

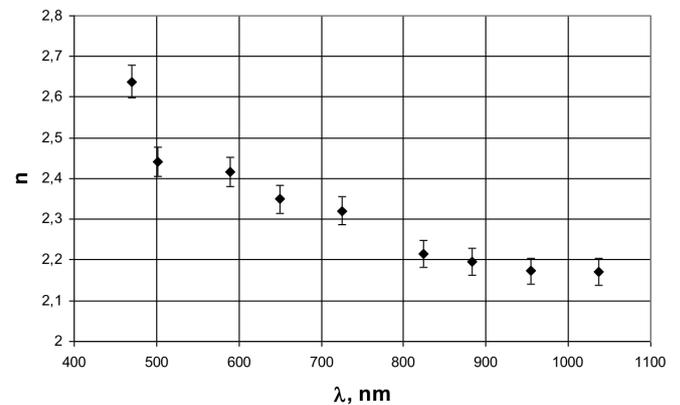


図 3. 石英基板上的のナノコンポジットコーティング Zr-Si-B-(N) 膜の分散曲線

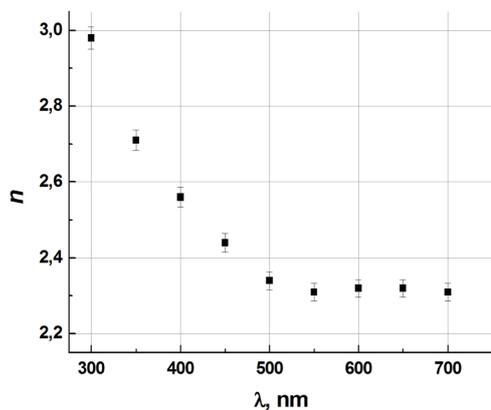


図 4. シリコン基板上的 LiNbO₃ 構造試料の分散曲線

結論

2 つのサンプルの屈折率は、多角度可変自動測定アクセサリを取り付けた Cary 5000 分光光度計を用いて求めました。

1 つ目のサンプルは、石英基板（可視光範囲で透明）上のナノコンポジットコーティング Zr-Si-B-(N) 膜で構成されていました。2 つ目のサンプルは、単結晶シリコン基板（可視光範囲で不透明）上の積層ニオブ酸リチウム LiNbO₃ 構造でした。

両方の屈折率は、± 0.01 の精度で計算されました。両方のサンプルで、薄膜の厚さは測定した屈折率から計算しました。

参考文献

1. D.P. Arndt, R.M.A. Azzam, J. M. Bennett, J. P. Borgogno, C. K. Carniglia, W. E. Case, J. A. Dobrowolski, U. J. Gibson, T. Tuttle Hart, F. C. Ho, V. A. Hodgkin, W. P. Klapp, H. A. Macleod, E. Pelletier, M. K. Purvis, D. M. Quinn, D. H. Strome, R. Swenson, P. A. Temple, and T. F. Thonn Multiple determination of the optical constants of thin-film coating materials, *Appl. Opt.* 23 (20) (1984), 3571 – 3596 <https://doi.org/10.1364/AO.23.003571>
2. A.V. Tikhonravov, M.K. Trubetskov, T.V. Amotchkina, G. DeBell, V. Pervak, A. Krasilnikova Sytchkova, M.L. Grilli, D. Ristau, Optical parameters of oxide films typically used in optical coating production, *Appl. Opt.* 50 (9) (2011) C1–C12, <http://dx.doi.org/10.1364/AO.50.000C75>
3. A.V. Tikhonravov, T.V. Amotchkina, M.K. Trubetskov, R.J. Francis, V. Janicki, J. Sancho-Parramon, H. Zorc, V. Pervak, Optical characterization and reverse engineering based on multiangle spectroscopy, *Appl. Opt.* 51 (2) (2012) 245–254, <http://dx.doi.org/10.1364/AO.51.000245>
4. W.-Ch Shih, Tz-L. Wang, X.-Y. Sun, M.-Sh Wu, Growth of c-axis-oriented LiNbO₃ films on ZnO/SiO₂/Si substrate by pulsed laser deposition for surface acoustic wave applications, *Jpn. J. Appl. Phys.* 47 (5) (2008) 4056–4059, <http://dx.doi.org/10.1143/JJAP.47.4056>
5. A.Z. Simoes, A.H.M. Gonzalez, A. Ries, M.A. Zaghete, B.D. Stojanovic, J.A. Varela, Influence of thickness on crystallization and properties of LiNbO₃ thin films, *Mater. Charact.* 50 (2003) 239–244, [http://dx.doi.org/10.1016/S1044-5803\(03\)00089-5](http://dx.doi.org/10.1016/S1044-5803(03)00089-5)
6. B.M. Ayupov, I.A. Zarubin, V.A. Labusov, V.S. Sulyaeva, V.R. Shayapov, Searching for the starting approximation when solving inverse problems in ellipsometry and spectrophotometry, *J. Opt. Technol.* 78 (6) (2011) 350–354, <http://dx.doi.org/10.1364/JOT.78.000350>
7. Ф.В. Кирюханцев-Корнеев, А.П. Козлова, Н.С. Козлова, Е.А. Левашов СТРУКТУРА, ФИЗИЧЕСКИЕ И ХИМИЧЕСКИЕ СВОЙСТВА НАНОКОМПОЗИТНЫХ ПОКРЫТИЙ Zr-Si-B-(N) Тезисы доклада Седьмой международной конференции «КРИСТАЛЛОФИЗИКА И ДЕФОРМАЦИОННОЕ ПОВЕДЕНИЕ ПЕРСПЕКТИВНЫХ МАТЕРИАЛОВ», Москва, 2017 г., с.104
8. N.S. Kozlova, V.R. Shayapov, E.V. Zabelina, A.P. Kozlova, R.N. Zhukov, D.A. Kiselev, M.D. Malinkovich, M.I. Voronova Spectrophotometric determination of optical parameters of lithium niobate films, *Modern Electronic Materials* 3 (2017), 122–126 <http://dx.doi.org/10.1016/j.moem.2017.09.001>
9. R.N. Zhukov, S.V. Ksenich, A.S. Bykov, D.A. Kiselev, M.D. Malinkovich, Yu.N. Parkhomenko, Synthesis and properties of the LiNbO₃ thin films intended for nanogradient structures, *PIERS Proc.* (2013) 98–101, <http://dx.doi.org/10.1143/JJAP.47.4056>

ホームページ

www.agilent.com/chem/jp

カスタムコンタクトセンター

0120-477-111

email_japan@agilent.com

本製品は一般的な実験用途での使用を想定しており、医薬品医療機器等法に基づく登録を行っておりません。本文書に記載の情報、説明、製品仕様等は予告なしに変更されることがあります。

アジレント・テクノロジー株式会社

© Agilent Technologies, Inc. 2018

Printed in Japan, November 30, 2018

5994-0558JAJP