Absolutmessungen von gerichteter Transmission und Reflexion an Festkörperproben in der GPOB unter Nutzung von VN-Einsätzen und Anwendung auf die optische Charakterisierung dünner Festkörperschichten

Olaf Stenzel, Steffen Wilbrandt, Norbert Kaiser

COSP 2011, 21.-22.März, Berlin

Fraunhofer Institut für Angewandte Optik und Feinmechanik IOF
Albert-Einstein-Str.7, 07745 Jena

Zusammenfassung:

Der Einsatz von spektralphotometrischen Messungen bei verschiedenen Einfallswinkeln und Polarisationszuständen erlaubt eine weitgehend ambiguitätsfreie Charakterisierung von Festkörperproben. Während eine genaue Messung des Transmissionsvermögens von Proben auf planparallelen, ebenen Substraten messtechnisch vergleichsweise einfach gelöst werden kann, ist die Realisierung einer genauen Reflexionsmessung durch das Fehlen einer stabilen 100% Referenz deutlich anspruchsvoller.

Aus diesem Grund wurde das Messprinzip des VN-Einsatzes am Fraunhofer Institut für Angewandte Optik und Feinmechanik IOF so angepasst, dass sowohl das Reflexions- als auch das Transmissionsvermögen einer Probe am gleichen Messfleck erfasst werden können. Mit diesem Strahlengang lassen sich unterschiedliche feste Einfallswinkel realisieren. Während die Variante für 6° Einfallswinkel keinen zusätzlichen Polarisator benötigt, ist er für die 45°-Variante unverzichtbar. Empfehlenswert ist für größere Einfallswinkel außerdem die Verwendung eines Depolarisators.

Die mit den VN-Einsätzen gewonnenen Eingangsdaten ermöglichen eine weitergehende Charakterisierung der betrachteten Festkörperschicht hinsichtlich ihrer Geometrie (Schichtdicke, Rauheit) und ihrer optischen Konstanten (Brechzahl, Extinktionskoeffizient). Die vorliegende Studie demonstriert Beispiele optischer Analytik an Dünnschichtsystemen auf Basis absoluter Transmissions- und Reflexionsmessungen im NIR/VIS/UV-Bereich mit den Perkin Elmer – Spektrometern Lambda 900 und 950. Die Beispiele umfassen:

- Bestimmung von Schichtdicke und optischen Konstanten an oxidischen Einfachschichten
- Bestimmung von Schichtdicke und optischen Konstanten an transparenten leitfähigen Festkörperschichten (TCOs) und Metallschichten
- Schnelle Abschätzung der optischen Bandlücke (Fundamentalabsorptionskante) aus Transmissionsspektren oxidischer Einfachschichten

Es wird gezeigt, dass mithilfe der zugrundeliegenden Modellvorstellungen konsistente Datensätze für die optischen Konstanten verschiedenartiger Schichtmaterialien generiert werden können. Speziell angepasste Softwaremoduli erlauben dabei die Bestimmung dieser Größen und der geometrischen Schichtparameter über einen Fit von Transmissions- und Reflexionsvermögen der entsprechenden Schichten bei einem oder

mehreren Einfallswinkeln. Die so erhaltenen optischen Konstanten sind dabei automatisch Kramers-Kronig-konsistent und korrelieren in sinnvoller Weise mit nichtoptischen Materialeigenschaften.

1. Einleitung

Die optische Leistungsfähigkeit eines Dünnschichtsystems wird ganz allgemein durch zwei Arten von Konstruktionsparametersätzen kontrolliert. Zum einen entscheiden geometrische Parameter wie Schichtdicken oder Oberflächen- bzw. Grenzflächenrauheiten über das Leistungsvermögen eines Dünnschichtsystems. Zum anderen sind Materialparameter, wie Brechzahl und Extinktionskoeffizient der die Einzelschichten bildenden optischen Schichtmaterialien für das Gesamtbild nicht minder ausschlaggebend.

In dieser Studie werden wir uns auf den zweiten Aspekt konzentrieren. Im einfachsten Modellfall homogener, isotroper und nichtmagnetischer Schichtmaterialien lassen sich die linearen optischen Materialeigenschaften über ein Paar optischer Konstanten definieren, das Phasengeschwindigkeit der Lichtwelle (Brechzahl n) und exponentielle Dämpfung (Extinktionskoeffizient k) beschreibt. Beide optische Konstanten sind nicht wirklich konstant, sondern frequenzabhängig (sogenannte Dispersion), wobei gilt:

$$n(\nu) + ik(\nu) = \sqrt{\varepsilon(\nu)} \tag{1}$$

mit ν - Wellenzahl des Lichts (= reziproker Wert der Vakuumwellenlänge) und $\varepsilon(\nu)$ – komplexer dielektrischer Funktion des jeweiligen Schichtmaterials.

Ein realistisches Dünnschichtdesign muss die physikalisch korrekte Frequenzabhängigkeit der optischen Konstanten der verwendeten Materialien durchaus berücksichtigen. Daraus erwächst in der Praxis die Aufgabe, die optischen Materialkonstanten dünner Festkörperschichten zum Zweck der Designoptimierung hinreichend genau zu bestimmen. Die vorliegende Studie beschreibt unsere dahingehenden Erfahrungen bei Nutzung von VN-Einsätzen zur Messung von Transmission und Reflexion mit den Perkin Elmer Spektralphotometern Lambda 900 bzw. 950.

2. Experiment

2.1. Transmissions- und Reflexionsmessungen: Allgemeines

Grundsätzlich kann das Reflexionsvermögen entweder durch eine Relativmessung gegen einen bekannten und als zeitlich unveränderlich angenommenen Reflexionsstandard oder durch eine Absolutmessung bei Verwendung eines geeigneten Strahlengangs realisiert werden. Bei den unterschiedlichen Lösungsansätzen wird immer gewährleistet, dass sich die Übertragungsfunktion für die Referenzmessung und die Messung an der Probe nur durch das Reflexionsvermögen der Probe unterscheidet.

Insbesondere zur genauen Absolutmessung von hochreflektierenden Proben hat sich die VW-Konfiguration [1] bewährt, bei der das Licht zweimal an der Probe reflektiert wird und entsprechend das Quadrat der Reflexion direkt gemessen werden kann. Für die Perkin Elmer Spektrometer der Serie Lambda 800/900 ist ein entsprechender Messeinsatz für einen Einfallswinkel von 7.5° kommerziell verfügbar. Bei Proben mit geringem Reflexionsvermögen kann in der VN-Konfiguration ein besseres Signal-Rausch-Verhältnis erreicht werden, da das Licht nur einmal an der Probe reflektiert wird.

Entsprechende Messeinsätze sind für die Perkin Elmer Spektrometer der Serie Lambda 800/900 für unterschiedliche feste [2] bzw. auch für einstellbare Einfallswinkel [3] des Lichts verfügbar.

Der vorliegende Beitrag konzentriert sich auf die Anwendung von VN-Einsätzen zur Absolutmessung von Transmission und Reflexion bei verschiedenen Einfallswinkeln. Die Abbildungen 1-4 verdeutlichen Grundzüge der verwendeten Messmethode.

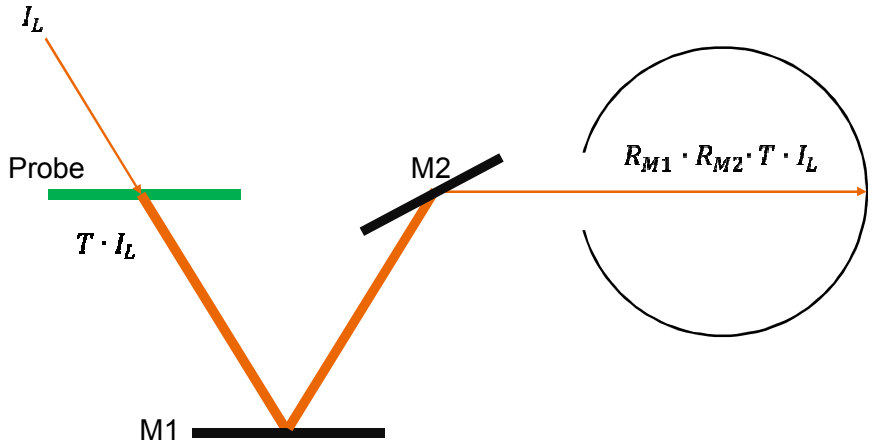

Abb. 1: *Prinzipieller Strahlengang im VN-Einsatz in „V-Konfiguration".*

Abb. 1 zeigt den Strahlengang in der V-Konfiguration in Anwendung auf eine Transmissionsmessung. Das von der Lichtquelle ausgesendete Licht der Intensität I_L wird durch die Probe mit gerichtetem Transmissionsvermögen T transmittiert und an den Spiegeln M1 und M2 mit den zugehörigen Reflexionsvermögen R_{M1} und R_{M2} reflektiert. Der in einer Ulbrichtkugel (im Bild rechts) platzierte Detektor misst demnach die Intensität

$$I_T = I_L * T * R_{M1} * R_{M2} + I_0 \qquad (2)$$

wobei I_0 das Dunkelsignal (bei geblocktem Lampenlicht) darstellt.

Zur Ermittlung der 100%-Linie wird die Probe aus dem Strahlengang entfernt (Abb. 2)

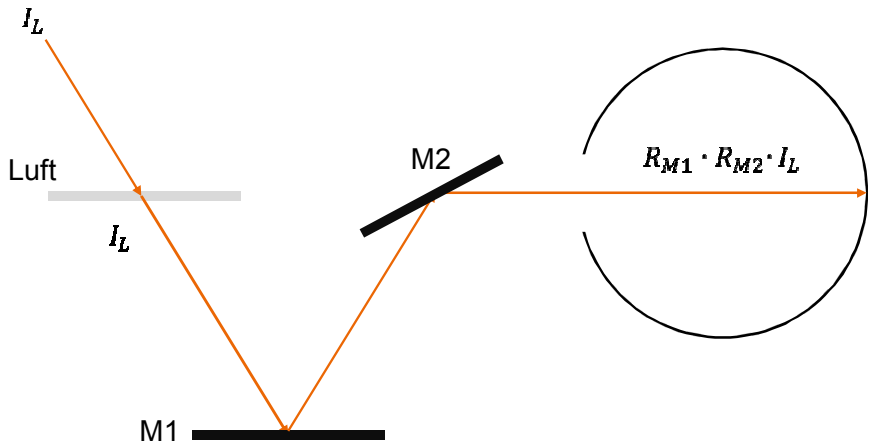

Abb. 2: *100%-Messung in V-Konfiguration*

Das nunmehr registrierte Signal I_{100} setzt sich zusammen gemäß:

$$I_{100} = I_L * R_{M1} * R_{M2} + I_0 \tag{3}$$

Zur Ermittlung von I_0 wird der Strahlengang gemäß Abb. 3 geblockt:

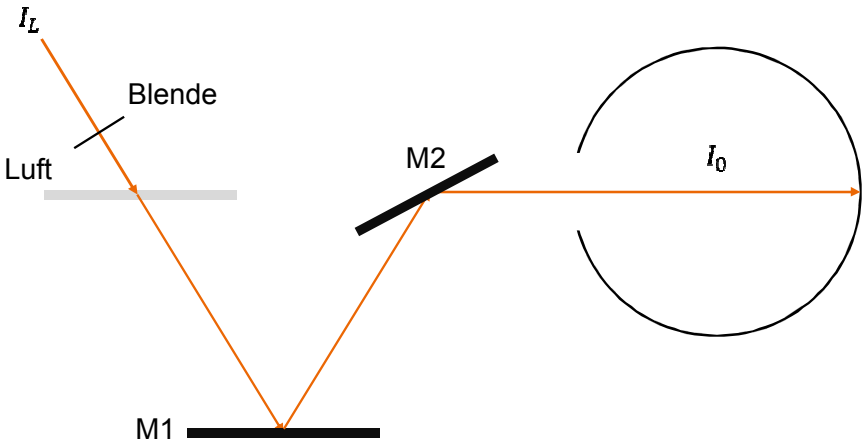

Abb. 3: *Referenzmessung zur Ermittlung des Dunkelsignals*

In dieser Konfiguration „ermittelt" der Detektor das Signal I_0.

Das Transmissionsvermögen ermittelt sich in dieser einfachen Modellvorstellung offenbar aus Gleichung (2) und (3)gemäß:

$$T = \frac{I_T - I_0}{I_{100} - I_0} \tag{4}$$

d.h. das Transmissionsvermögen wird absolut, ohne zusätzliche Transmissionsreferenz, über insgesamt 3 Intensitätsmessungen bestimmt.

Zur Messung des Reflexionsvermögens wird das Spiegelsystem M1 und M2 „nach oben geklappt". Gemäß Abb. 4 erhält man jetzt die N-Stellung, die im Strahlengang nach Reflexion an der Probe völlig spiegelsymmetrisch zur V-Stellung ist. Gemessen wird das Signal:

$$I_R = I_L * R * R_{M1} * R_{M2} + I_0 \tag{5}$$

Mit R - Reflexionsvermögen der betrachteten Probe. Für das Reflexionsvermögen ergibt sich demnach aus (3) und (5):

$$R = \frac{I_R - I_0}{I_{100} - I_0} \tag{6}$$

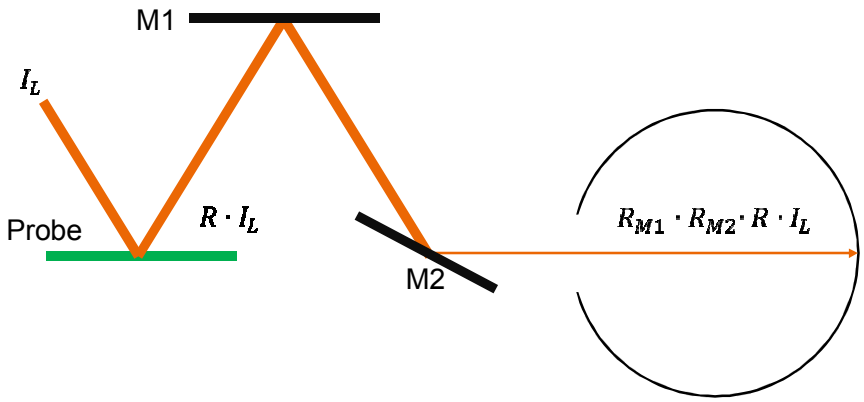

Abb. 4: *Reflexionsmessung in der „V-Konfiguration"*

Auch das Reflexionsvermögen kann somit frei vom Vergleich mit einem bekannten Reflexionsstandard ermittelt werden.

2.2. Umsetzung des VN-Prinzips am IOF

2.2.1. Messungen bei einem Einfallswinkel von 6°

Dieses Messprinzip wurde am Fraunhofer Institut für Angewandte Optik und Feinmechanik IOF so angepasst, dass sowohl das Reflexions- als auch das Transmissionsvermögen einer Probe am gleichen Messfleck erfasst werden können (Abbildung 5). Der durch die Probe durchgelassene transmittierte Strahl und der an der Probe reflektierte Strahl werden durch die zwei Spiegel M1 und M2 auf symmetrischen Wegen in die Probenebene gelenkt. Beide Spiegel sind in einem schwenkbaren Spiegelhalter montiert. Die Drehachse, um die der Spiegelhalters geschwenkt werden kann, verläuft sowohl in der Einfallsebene des Messstrahles auf die Probe als auch in der Ebene der Probenoberfläche.

Der Messstrahl (gelbe Linie) verlässt die Anordnung in der Drehachse. Durch eine 180°-Schwenkung des Spiegelhalters werden Transmissions- und Reflexionsstellung symmetrisch zur Drehachse ineinander überführt. Die Wirkungen verbleibender Unsymmetrien (Justierfehler, unsymmetrische Energieverteilung im Messstrahl) zwischen Transmissions- und Reflexionsstellung werden durch die zum Lieferumfang der General Purpose Optical Bench (GPOB) gehörende und dem Empfänger vorgelagerte Integrationskugel minimiert. Die Integrationskugel ist dabei so in der GPOB aufgestellt, dass ihr Eintrittsport vom Referenzstrahl des Spektrometers (grüne Linie) unmittelbar getroffen wird.

Der Messstrahl (gelbe Linie) wird durch den ortsfesten dritten Spiegel M3 in die Integrationskugel gelenkt. Mit diesem Strahlengang lassen sich prinzipiell unterschiedliche feste Einfallswinkel auf der Probe realisieren.

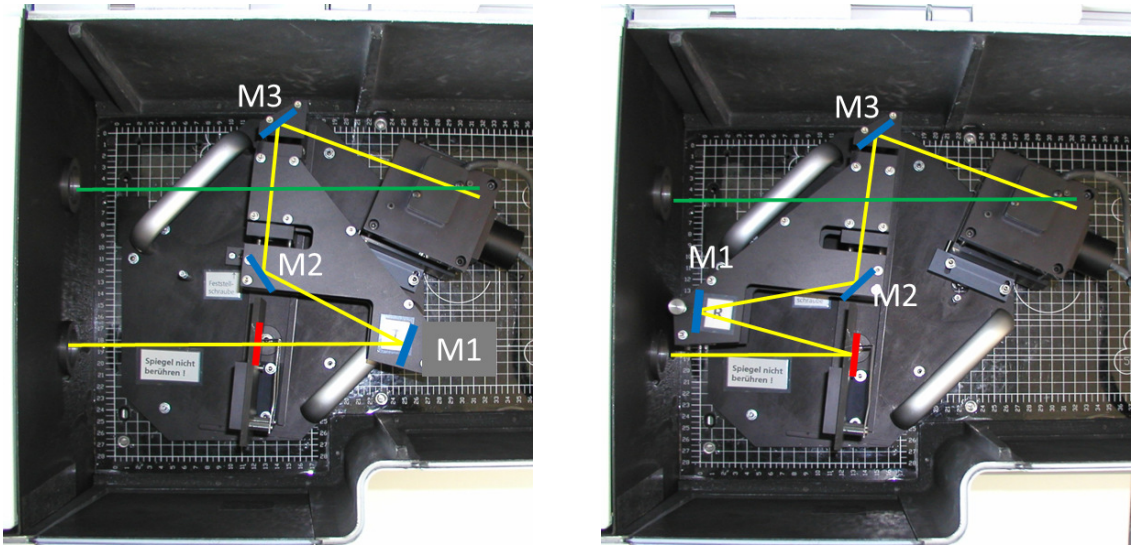

Abb. 5: *Strahlengang des Messstrahls (gelbe Linie) und des Referenzstrahls (grüne Linie) im 6°-VN-Einsatz für Transmissions- (links) und Reflexionsmessung (rechts). Die Probe ist rot dargestellt.*

2.2.2. Messungen bei einem Einfallswinkel von 45°

Der für Messungen bei 45° Einfallswinkel modifizierte Messeinsatz ist in Abb. 6 gezeigt:

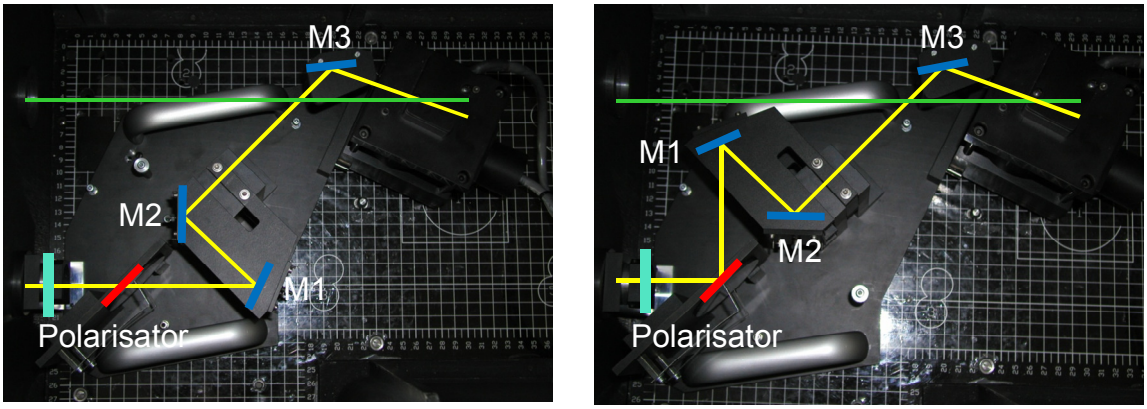

Abb. 6: *Strahlengang des Messstrahls (gelbe Linie) und des Referenzstrahls (grüne Linie) im 45°-VN-Einsatz für Transmissions- (links) und Reflexionsmessung (rechts). Die Probe ist rot dargestellt, der Polarisator in Türkis.*

Während die Variante für 6° Einfallswinkel (fast senkrechter Lichteinfall auf die Probe) keinen zusätzlichen Polarisator benötigt, ist er für die 45°-Variante unverzichtbar. Empfehlenswert ist außerdem die Verwendung des durch Perkin Elmer optional angebotenen Depolarisators.

Beispiele für einfache Messungen an Quarz- und Siliziumsubstraten können Ref. [4] entnommen werden.

In Anwendung auf die Charakterisierung von Dünnschichtproben ermöglichen die mit den VN-Einsätzen gewonnenen Eingangsdaten eine weitergehende Charakterisierung der betrachteten Festkörperschicht hinsichtlich ihrer Geometrie (Schichtdicke, Rauheit) und ihrer optischen Konstanten (Brechzahl, Extinktionskoeffizient). Beispiele dazu werden im Abschnitt 4 gezeigt.

3. Verwendete Modelle für die Frequenzabhängigkeit der optischen Konstanten

3.1. Oszillatormodell

Um aus den gemessenen Probenspektren die Materialeigenschaften (optischen Konstanten) von Dünnschichtmaterialien zu extrahieren, ist es eine häufig verwendete Methode, unter Annahme einer geeignet parametrisierten Frequenzabhängigkeit der optischen Konstanten die experimentellen Spektren zu fitten. Den dabei postulierten Typ der Frequenzabhängigkeit (Dispersion) bezeichnen wir im Weiteren als Dispersionsmodell. Im Rahmen der vorliegenden Studie erweist es sich als ausreichend, den Spektrenfits das Lorentzsche Mehroszillatormodell zugrunde zu legen.

Das Oszillatormodell stellt ein eher traditionelles Dispersionsmodell dar, das eine näherungsweise Beschreibung der optischen Konstanten im Bereich der Bandkante ermöglicht. Die dielektrische Funktion berechnet sich in diesem Modell (hier als Einoszillatormodell ausgeschrieben) gemäß [5]:

$$\varepsilon(\nu) = 1 + \frac{\nu_p^2}{\nu_0^2 - \nu^2 - 2i\nu\Gamma} \tag{7}$$

mit ν_0 – Resonanzwellenzahl, ν_p – Plasmafrequenz der zugehörigen Ladungsträger in Wellenzahleinheiten, 2Γ - homogene Linienbreite der zugehörigen Absorptionslinie. Dabei erweist sich schnell, dass das Einoszillatormodell aufgrund seiner breiten Absorptionsausläufer (Lorentzlinie) den Extinktionskoeffizienten im Transparenzbereich einer realen Festkörperschicht tendenziell überschätzt. Das ist ohne weiteres verständlich, da eine reale, endlich breit erscheinende Absorptionsstruktur üblicherweise aus einer Vielzahl deutlich schmalerer einzelner Absorptionslinien zusammengesetzt ist (inhomogene Linienverbreiterung). Diesem Umstand kann man Rechnung tragen, indem man die praktisch immer präsente inhomogene Linienverbreiterung von vornherein in das Modell mit einschließt. Im einfachsten Fall wird dazu gern auf eine Faltung der Lorentzlinie mit einer Gaußkurve (sogenannter Brendel-Oszillator [6,7]) zurückgegriffen. Da aber die Gaußverbreiterung hier eine eher willkürliche Annahme ist, kann man sich alternativ dadurch behelfen, dass man die betrachtete inhomogen verbreiterte Absorptionsstruktur explizit durch eine Superposition mehrerer Oszillatoren modelliert (Mehroszillatormodell). In der Praxis bedeutet das, dass beliebig komplizierte Absorptionsstrukturen im Bereich der Bandkante durch eine begrenzte Anzahl von Ersatzoszillatoren modelliert werden. In all diesen Fällen verallgemeinert sich Formel (7) zu einem Ausdruck, in dem mehrere Resonanzterme miteinander superponiert werden. Wir bevorzugen im Weiteren dafür eine etwas modifizierte Schreibweise gemäß Formel (8):

$$\varepsilon(\nu) \approx 1 + \frac{1}{\pi}\sum_j J_j \left(\frac{1}{\nu_{0j} - \nu \ - i\Gamma_j} + \frac{1}{\nu_{0j} + \nu \ + i\Gamma_j} \right) \tag{8}$$

wobei der normierte Intensitätsfaktor J näherungsweise das Integral der zur jeweiligen Resonanz gehörigen lorentzförmigen Absorptionslinie in Wellenzahleinheiten wiedergibt. Abb. 7 zeigt den Verlauf der dielektrischen Funktion sowie von *n* und *k* (vgl. Formel (1)) im Umfeld einer mit Gleichung (8) beschriebenen Absorptionsresonanz:

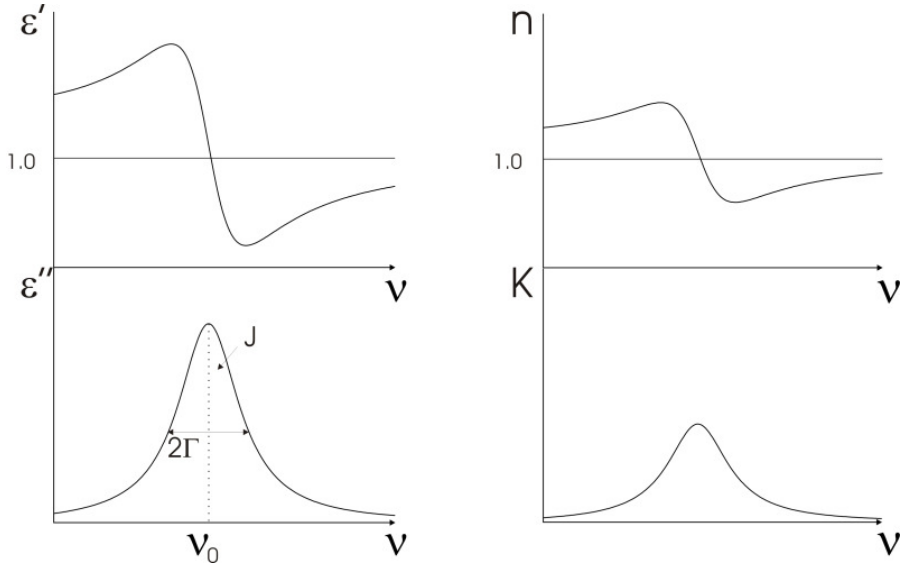

Abb.7: *Prinzipieller Verlauf von Real- (ε′) und Imaginärteil (ε″) der dielektrischen Funktion sowie von n und k im Umfeld einer Absorptionsresonanz*

Bei der Nutzung des Mehroszillatormodells kommt es mitunter zu Missverständnissen, was die physikalische Relevanz der so erhaltenen Oszillatorparameter betrifft. Tatsächlich wird man als Dünnschichtoptiker das Oszillatormodell (wie übrigens auch jedes andere Dispersionsmodell) nur als nützliches Werkzeug für die konsistente mathematische Beschreibung der eigentlich gesuchten optischen Konstanten ansehen [8]. Es liegt nicht in der Absicht der Dünnschichtphysiker, einzelnen Modellparametern eindeutig einen verifizierbaren physikalischen Sinn zuzuordnen. Wer an der weiteren festkörperphysikalischen Interpretation der Modellparameter interessiert ist, wird auf das Ein- oder Mehroszillatormodell nicht unbedingt zurückgreifen [9].

Ungeachtet dessen zeigt die Analysepraxis, auch dass das Mehroszillatormodell die Extinktionswerte im Transparenzbereich gern überschätzt, solange man sich auf eine handhabbare Anzahl von Oszillatoren beschränkt. Das ist beim Fit spektralphotometrisch erhaltener Einzelschichtspektren noch nicht augenfällig, da die Transmissions- und Reflexionsspektren homogener dielekrischer Einfachschichten im Rahmen der Messfehler (jeweils typisch bei 0,2 … 0,5%) üblicherweise hervorragend gefittet werden können. In einem hinreichend dicken Schichtstapel hingegen macht sich diese *k*-Überschätzung durchaus bemerkbar. Eine gern verwendete alternative *k*-Modellierung mithilfe einer Urbachkante [10] führt hingegen gern zur Unterschätzung der Extinktionswerte. Die Autoren dieses Beitrags stehen auf dem Standpunkt, dass die *systematische Unterschätzung* der Extinktion für die meisten Anwendungen eine größere Gefahr darstellt als ihre *systematische Überschätzung*, und geben daher dem Mehroszillatormodell den Vorzug. Im Übrigen lässt sich natürlich auch der Effekt einer systematischen *k*-Überschätzung durch eine realistische Fehlerabschätzung bereits auf der Designstufe berücksichtigen.

3.2. Vereinfachte Abschätzung der optischen Bandlücke:

In Anwendungsfällen, wo vor allem das Verhalten des Absorptionskoeffizienten $\alpha(\nu) \equiv 4\pi\nu k(\nu)$ im Bereich der Bandkante von Interesse ist, kann man sich mit vereinfachten Dispersionsgesetzen weiterhelfen. So gelten für amorphe Halbleiter im Bereich der Bandkante vereinfachte Ansätze gemäß (Tauc, Cody [11, 12]):

$$\sqrt{\alpha(\nu)\nu} \propto (hc\nu - E_0) \text{ (Tauc)}, \tag{9}$$

bzw.

$$\sqrt{\frac{\alpha(\nu)}{\nu}} \propto (hc\nu - E_0) \text{ (Cody)} \tag{10}$$

h ist hier das Plancksche Wirkungsquantum, und *c* die Vakuumlichtgeschwindigkeit. Die Größe E_o wird als optische Bandlücke bezeichnet und kann entsprechend aus einem Fit der Frequenzabhängigkeit des Absorptionskoeffizienten bestimmt werden.

Eine vereinfachte Abschätzung der Tauc-Bandlücke gemäß (9) ist aber bereits aus dem Transmissionsvermögen (bei senkrechtem Lichteinfall) allein möglich. So ergibt sich im Bereich der Bandkante näherungsweise [13]:

$$\sqrt{-\nu \ln T(\nu)} \propto hc\nu - E_0 \tag{11}$$

was eine unmittelbare Abschätzung der Bandlücke direkt aus dem Transmissionsspektrum ermöglicht. Formel (11) gilt näherungsweise unter der Annahme vernachlässigbarer Brechzahldispersion von Schicht und absorptionsfrei gedachtem Substrat.

3.3. Software

3.3.1. LCalc-Software

Zur Bestimmung der optischen Konstanten aus Transmissions- und Reflexionsmessungen ist das Computerprogramm LCalc geschaffen worden, das einen Fit der genannten Spektren von Einfachschichten im Rahmen des Dispersionsansatzes (8) ermöglicht [14]. Für elektrisch leitfähige Schichten (Metalle, transparente leitfähige Oxide „TCO“) kann außerdem noch ein Term entsprechend der Drudefunktion [13] hinzugefügt werden.

Das Programm arbeitet prinzipiell im Rahmen eines homogenen und isotropen Schichtmodells, es kann jedoch eine Oberflächenrauheit der ersten Oberfläche (langskalige Rauheit, d.h. Berücksichtigung von Streuverlusten gemäß der Herangehensweise in [15]) berücksichtigt werden. Da jedem Einzelspektrum eine separate Schichtdicke zugeordnet wird, können auch verschiedene Schichten identischen Materials (aber verschiedener Dicke oder auch auf verschiedenen Substraten) zur Bestimmung eines einzigen *n*-*k*-Datensatzes herangezogen werden. Das Substrat wird grundsätzlich ebenfalls als homogen und isotrop angesetzt, wobei beide Substratgrenzflächen sowie bei absorbierenden Substratmaterialien auch die Substratdicke in die Berechnung eingehen. Die Reflexionsspektren können sowohl mit schicht- als auch substratseitigem Lichteinfall aufgenommen sein. Aus den genannten Eingangsdaten berechnet das Programm dann durch Spektrenfit die freien Parameter im Ansatz (8) sowie die jeweiligen Schichtdicken.

3.3.2. ECalc-Software

Die ECalc-Software wurde zur Abschätzung der gemäß Gleichung (9) definierten Tauc-Bandlücke geschaffen. Das Programm verwertet lediglich das Transmissionsspektrum der Schicht bei senkrechtem Lichteinfall, wobei der in Beziehung (11) links stehende Term

über der Wellenzahl aufgetragen wird. Ergibt sich dabei ein linearer Spektrenabschnitt, so erhält man das Tauc-Gap aus dem Schnittpunkt der dort gebildeten Regressionsgeraden mit der Abszissenachse (Abb. 8)

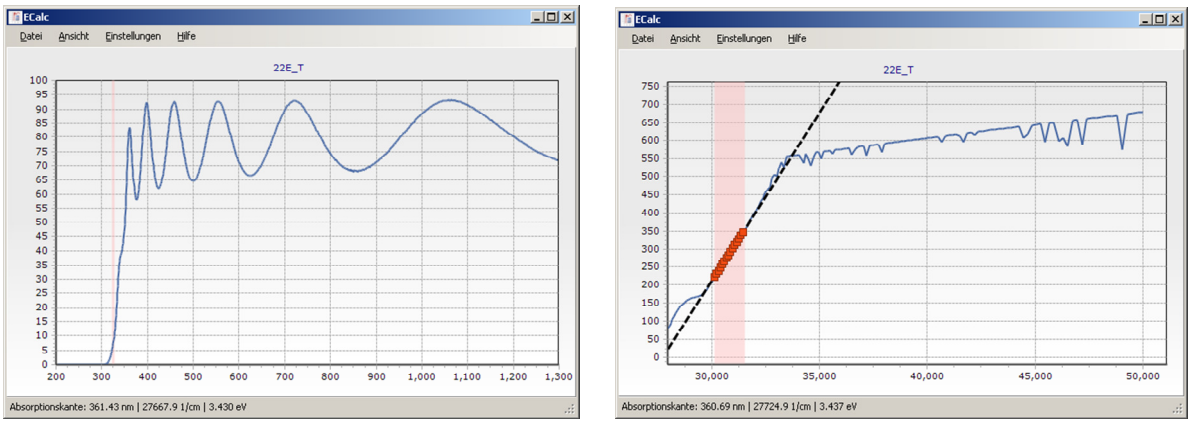

Abb. 8: *Abschätzung der Tauc-Bandlücke für eine Niobpentoxidschicht.*
Links: Transmissionsspektrum als Funktion der Wellenlänge.
Rechts: Der Term $\sqrt{-\nu \ln T(\nu)}$ *als Funktion der Wellenzahl. Der Schnittpunkt der im linearen Bereich angepassten Regressionsgeraden mit der Abszisse markiert die Bandlücke, hier etwa 3.44 eV.*

4. Ergebnisbeispiele

4.1. Fit von Transmissions- und/oder Reflexionsspektren mit LCalc:

Im Folgenden werden vier Beispiele für Spektrenfits mittels der genannten LCalc-Software vorgestellt. Das erste Beispiel (Abb.9) demonstriert einen LCalc-Screenshot mit der Lösung einer Standardaufgabe. Aus Transmissions- und Reflexionsspektren einer Einfachschicht (hier Hafniumoxid mit Zieldicke 200nm auf SQ1) sollen die optischen Konstanten im Transparenzbereich ermittelt werden. Dazu wird im konkreten Beispiel der Spektralbereich zunächst begrenzt auf den Bereich der gemessenen Spektren, in dem die optischen Verluste 3% nicht überschreiten. Im vorliegenden Beispiel ist somit der Fitbereich auf das Wellenzahlfenster zwischen 10000cm^{-1} und 41000cm^{-1} beschränkt. In der Regel genügt für einen derartigen Spektrenfit dann die Berücksichtigung zweier Oszillatoren in Gleichung (8), wobei für den höherfrequenteren Oszillator, der praktisch nur Beiträge zur Brechzahl liefert, die Linienbreite mit Null festgelegt werden kann. Damit verbleiben 5 freie Parameter für den Fit von Brechzahl und Extinktionskoeffizient, die im Allgemeinen schnell ermittelt sind und einen Spektrenfit wie in Abb. 9 gezeigt ermöglichen. Abb. 9 zeigt nun in der oberen Hälfte die dielektrische Funktion als Funktion der Wellenzahl (links - Realteil; rechts – Imaginärteil), und in der unteren Hälfte die Qualität des Fits der Transmission (links) sowie der Reflexion (rechts). Dabei zeigen die Symbole die Messwerte an, die in diesem Fall bei einem Einfallswinkel von 6° (Abb.5) ermittelt wurden. Die durchgezogene Linie entspricht dem theoretischen Spektrum. Die Dicke ergab sich aus dem gegebenen Fit mit d=195,5nm. Aus der gezeigten dielektrischen Funktion ergeben sich nach Gleichung (1) einfach *n* und *k*.

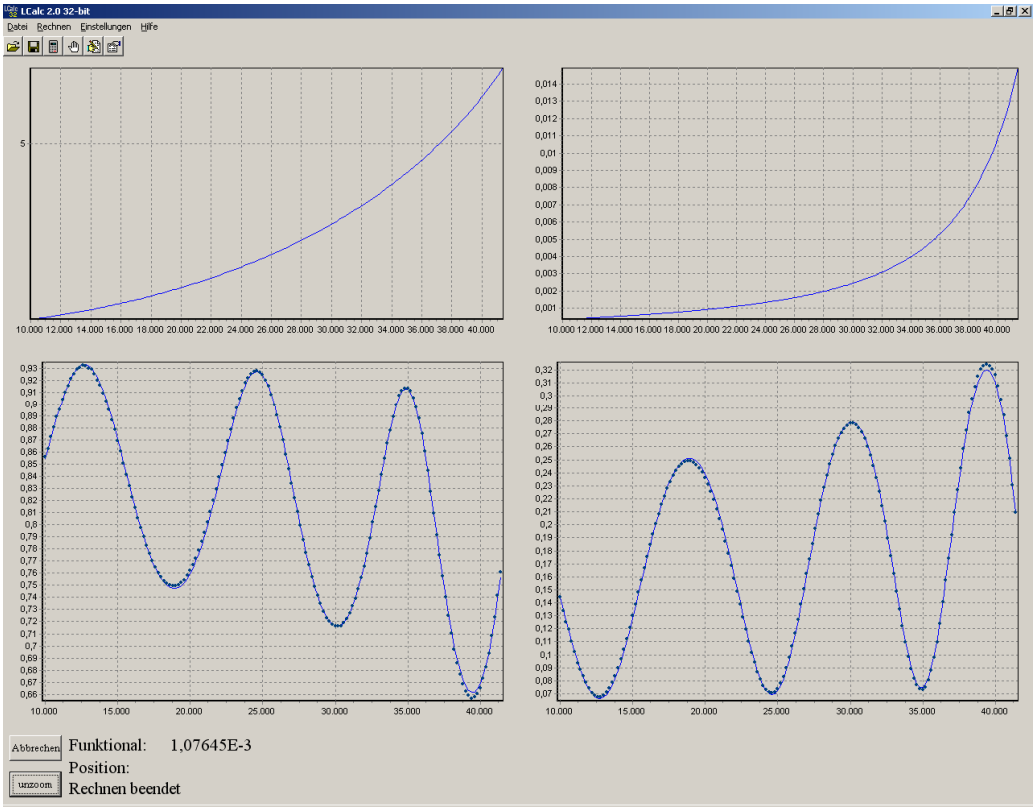

Abb. 9: *LCalc-Screenshot: Fit des Transmissions- und Reflexionsspektrums einer HfO_2-Schicht auf SQ1 im Transparenzbereich*

Es mag hervorhebenswert sein, dass in der Praxis etwa 90% der Anwendungsfälle sich auf diesen (eher langweiligen) Spektrentyp beziehen, wo faktisch 5 oder sogar weniger Material-parameter für den Spektrenfit benötigt werden. Die im Folgenden gezeigten Beispiele „interessanterer" Spektrenfits stellen in der Praxis eher Ausnahmen dar, sind aber trotzdem geeignet, um die Leistungsfähigkeit des gegebenen Ansatzes zu demonstrieren.

Das zweite Beispiel behandelt exakt die gleiche Probe, nun aber unter Einbeziehung der Absorptionskante. Der Spektrenfit erstreckt sich über den gesamten registrierten Messbereich zwischen 10000cm^{-1} und 50000cm^{-1}, das entspricht dem Wellenlängenbereich zwischen 200nm und 1000nm. Das Transmissionsvermögen der Probe fällt dabei bis unter 10% (siehe Abb.10 links unten). Offenbar werden für den Fit dieser Spektren mehr Parameter notwendig sein, tatsächlich braucht man in diesem Fall 4 Oszillatoren für den Fit der Absorptionsstruktur, sowie zusätzlich 2 Oszillatoren (wiederum mit Breite Null) für die korrekte Wiedergabe der Brechzahl. Die Schichtdicke ergibt sich aus diesem Fit identisch mit der aus dem Transparenzbereich (erstes Beispiel) ermittelten.

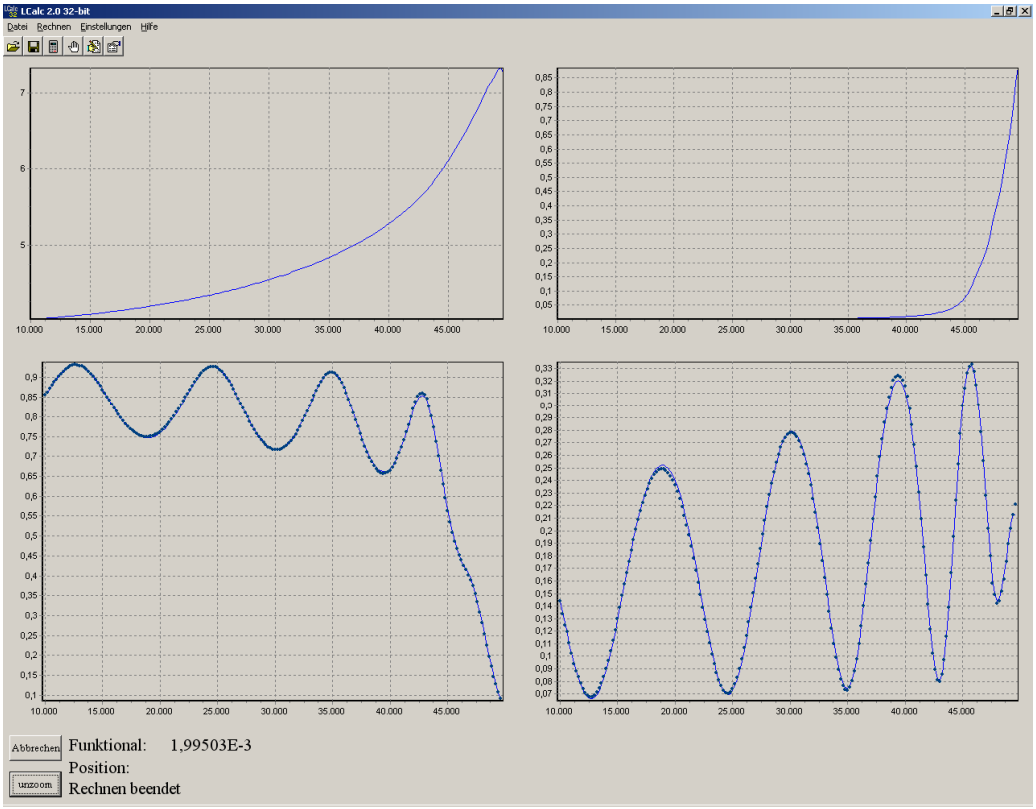

Abb. 10: *wie Abb. 9, aber unter Einbeziehung der Absorptionskante*

Das dritte Beispiel ist in Abb. 11 dargestellt. Ziel war es, die optischen Konstanten einer ITO-Schicht zu bestimmen, die auf einem rückseitig aufgerauten Siliziumwafer aufgebracht war. Da in diesem Fall die Durchführung einer Transmissionsmessung entfiel, wurden als experimentelle Spektren nur die Reflexionsspektren bei nahezu senkrechtem Lichteinfall (Abb.5) sowie bei 45° Lichteinfall (s- und p-polarisiert, Abb. 6) aufgenommen. Sie sind in dieser Reihenfolge von oben nach unten in der rechten Spalte des Screenshots in Abb. 11 gezeigt. Statt der fehlenden Transmissionsspektren ist auf der linken Seite in Abb. 11 der Verlauf der Diskrepanzfunktion zwischen Experiment und Fit aufgetragen.

Der Fit wurde mit einem absoluten Minimum an Parametern durchgeführt. Zum einen werden die freien Ladungsträger im ITO durch den bereits erwähnten Drudeterm erfasst (er ist mathematisch identisch mit dem zweiten Term in Formel (7) bei auf Null gesetzter Resonanzfrequenz). Ein weiterer Oszillator erfasst den kurzwelligen Absorptionsausläufer, und ein Oszillator (wiederum mit der Breite Null) komplettiert die Brechzahlbeschreibung. Die durchaus komplizierten rechtsseitig gezeigten Spektren werden also durch insgesamt 7 Materialparameter beschrieben. Der Fit ist naturgemäß nicht exzellent, aber alle wichtigen spektralen Strukturen werden richtig wiedergegeben. Bemerkenswert ist die zwanglose Reproduktion der Berreman-Struktur [16] im p-Spektrum (unten rechts bei 8000cm^{-1}), die mit dem Nulldurchlauf des Realteils der dielektrischen Funktion (ganz oben links) korrespondiert. Wie bereits erwähnt ergeben sich die Schichtdicken für die einzelnen Spektren unabhängig aus den Fits, sie streuen zwischen 106nm und 107nm, sind also exzellent miteinander konsistent.

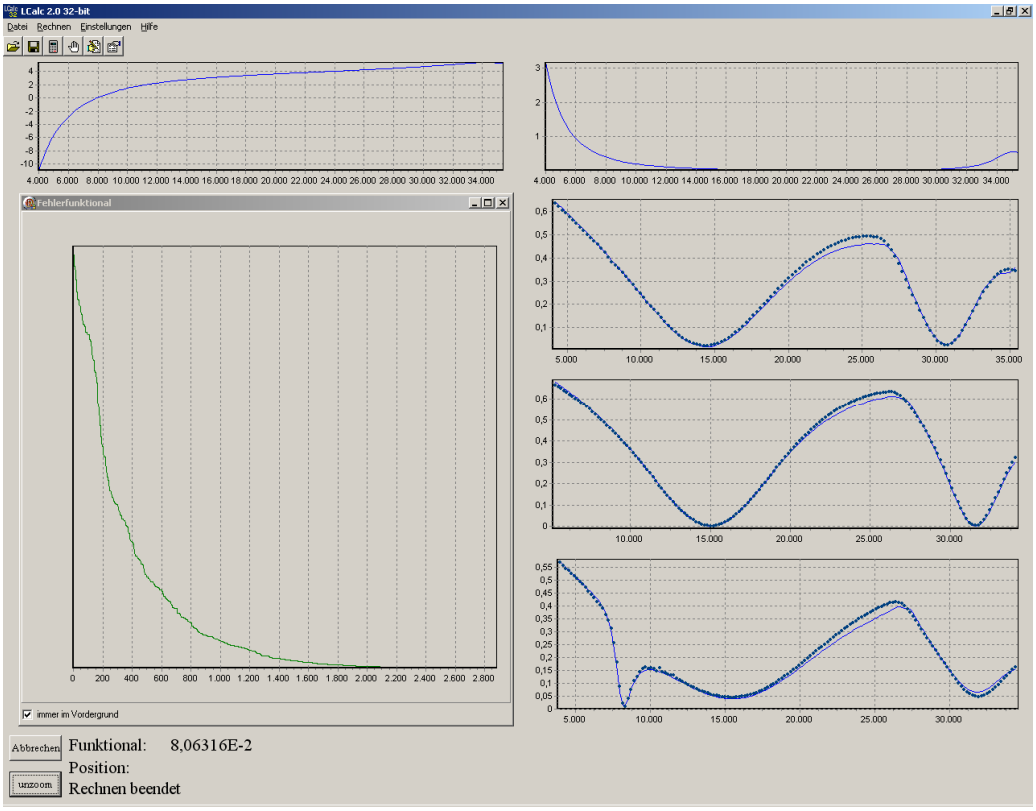

Abb.11: *LCalc-Screenshot: Fit der Reflexionsspektren einer ITO-Schicht auf Silizium*

Abschließend zeigt Abb.12 das „Fitergebnis“ eines etwas problematischeren Probensatzes. Hierbei handelt es sich um zwei Aluminiumschichten, wiederum auf rückseitig rauen Siliziumwafern. Von oben nach unten zeigen die rechts aufgereihten Spektren das Reflexionsvermögen einer:

- Dünnen Aluminiumschicht bei 6°
- Dünnen Aluminiumschicht bei 45° (p-Polarisation)
- Dünnen Aluminiumschicht bei 45° (s-Polarisation)
- dickeren Aluminiumschicht bei 6°
- dickeren Aluminiumschicht bei 45° (p-Polarisation)
- dickeren Aluminiumschicht bei 45° (s-Polarisation)

In den oberen drei Spektren sind bei genauem Hinsehen noch Andeutungen der Reflexion einer Siliziumoberfläche zu erkennen. D.h. das Silizium ist durch die stark dämpfende Alu-Schicht immer noch „sichtbar“, was letztlich eine realistische Möglichkeit gibt, die Schichtdicke zu bestimmen. Gleichzeitig ist die zweite Schicht so dick, dass kein Siliziumsignal mehr detektierbar ist. Demnach ist hier die Schichtdickenbestimmung auf optischem Wege aussichtslos. Trotzdem enthalten die drei untersten Reflexionsspektren noch Informationen über *n* und *k*. Die Gesamtheit aller Spektren lässt also erwarten, sowohl *n* und *k* als auch die Dicke der dünneren Schicht bestimmen zu können.

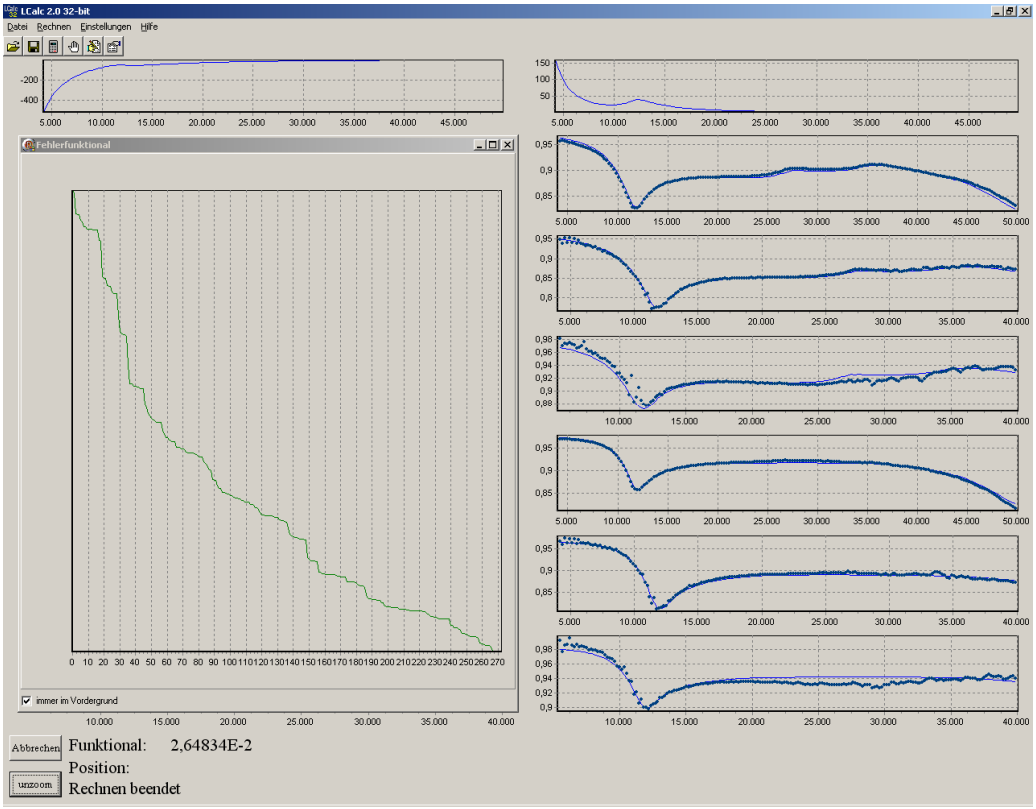

Abb 12: *LCalc-Screenshot: Fit der Reflexionsspektren zweier Aluminiumschichten auf Silizium*

In der Praxis ist ein derartiger Fit problematisch, und das Ergebnis ist aus Abb. 12 ersichtlich. Wiederum sind die wesentlichen Strukturen richtig wiedergegeben. Die Dicke der dünneren Schicht ergab sich mit 24nm, was exzellent mit unabhängig durchgeführten Röntgenreflektometriemessungen (XRR) übereinstimmt. Übrigens ergaben die XRR-Messungen für die dickere Schicht einen Wert von 45nm. Dieser Wert wurde im Programm auch als fix gesetzte Dicke für die zweite Probe verwendet. Das erleichterte den Fit durchaus, denn das Programm berücksichtigt damit implizit den Umstand, dass die gesuchten optischen Konstanten für eine 45nm dicke Schicht bei zweimaligem Lichtdurchlauf bereits komplette Nichttransparenz garantieren sollten.

Die erhaltenen optischen Konstanten von Aluminium sind in Abb. 13 gezeigt. Zum Vergleich sind Literaturwerte (Symbole) gezeigt, die die Relevanz der erhaltenen optischen Konstanten belegen. Die Herangehensweise ist damit prinzipiell auch für die Auswertung der Spektren von Metallschichten geeignet.

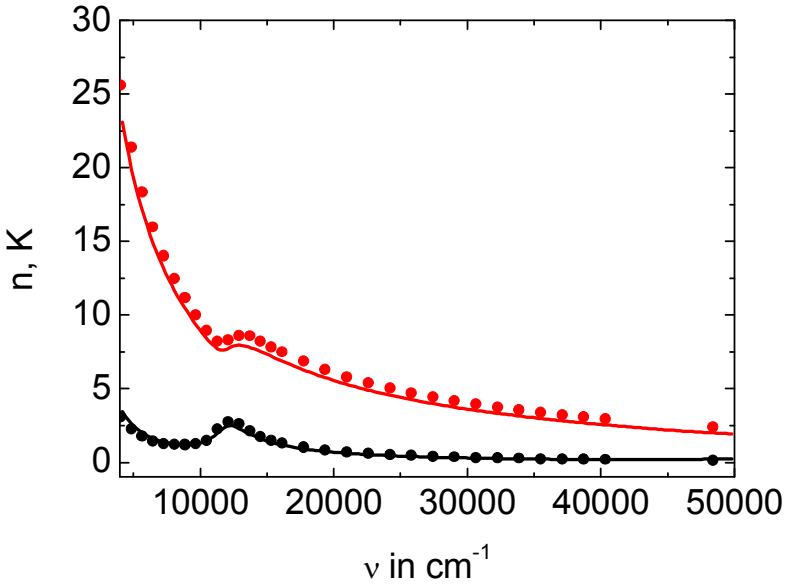

Abb. 13: *Optische Konstanten (schwarz: n und rot: k), wie sie aus dem in Abb. 12 gezeigten Spektrenfit erhalten wurden. Die Symbole zeigen zum Vergleich Literaturwerte für bulk-Aluminium [17].*

4.2. Ergebnisbeispiele für die Bandlückenbestimmung:

Abb. 14 zeigt Ergebnisse der Bandlückenabschätzung aus dem Transmissionsspektrum nach (11) für verschiedene Niobpentoxid- und Tantalpentoxidschichten. Zum Vergleich sind auch entsprechende Ergebnisse der Bandlückenbestimmung mittels Spektralellipsometrie (Dr. Mykola Vinnichenko, Forschungszentrum Dresden) gezeigt, die unter Zugrundelegen des Tauc-Lorentz-Dispersionsmodells [18] erhalten wurden. Die Ergebnisse sind in guter Übereinstimmung. Der Trend fallender Bandlücken mit steigender Brechzahl spiegelt das nach der Moss-regel [19] zu erwartende Verhalten wider.

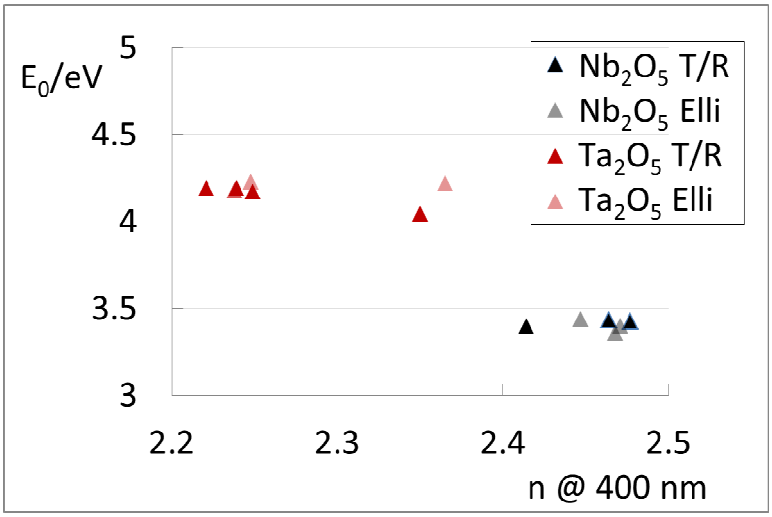

Abb. 14: *Bandlücken vs. Brechzahl für Niob- und Tantalpentoxidschichten*

5. Zusammenfassung:

Da die vorliegende Studie mehr auf die Darstellung der Methodik der Bestimmung optischer Schichtparameter auf der Basis gemessener Transmissions- und/oder Reflexionsspektren fokussiert ist, verzichten wir hier auf eine detaillierte Diskussion der aus den gezeigten Beispielen erhaltenen Ergebnisse. Stattdessen sei auf die Referenzen [20,21] verwiesen, wo dieser Diskussion breiter Raum gewidmet ist. Insbesondere wird in diesen Referenzen gezeigt, dass:

- die erhaltenen Ergebnisse physikalisch sinnvolle Korrelationen untereinander aufweisen
- die erhaltenen Ergebnisse sich in exzellenter Übereinstimmung mit parallel ausgeführten spektralellipsometrischen Charakterisierungen befinden (siehe dazu auch [22]).

Die vorgestellten Messeinrichtungen sind in Kombination mit der vorhandenen Auswertesoftware für die Schichtcharakterisierung demnach unbedingt geeignet.

Es war insbesondere unser Ziel zu zeigen, dass mithilfe des Mehroszillatormodells konsistente Datensätze für die optischen Konstanten verschiedenartiger Schichtmaterialien generiert werden können. Die LCalc-Software erlaubt dabei die Bestimmung dieser Größen über einen Fit von Transmissions- und Reflexionsvermögen der entsprechenden Schichten bei einem oder mehreren Einfallswinkeln. Hinreichend genaue Messungen von T und R können dabei mithilfe der entwickelten VN-Einsätze gewonnen werden.

Die so erhaltenen optischen Konstanten sind dabei automatisch Kramers-Kronig-konsistent [23] und korrelieren in sinnvoller Weise mit nichtoptischen Materialeigenschaften. Das wurde konkret am Beispiel dielektrischer oxidischer Schichten sowie jeweils für ein TCO und eine Metallschicht gezeigt. Die Methodik ist auch geeignet, bei Anwendung auf Reproduzierbarkeitsversuche Informationen über prozessbedingte Schwankungen in den optischen Konstanten zu liefern, die dann ihrerseits als Input für virtuelle Prozessläufe zur Designoptimierung dienen können [24].

6. Danksagung:

Die hier dargestellten Ergebnisse sind im Rahmen einer Vielzahl von Projekten entstanden. Herr Dr. Wilbrandt dankt in diesem Zusammenhang der Deutschen Forschungsgemeinschaft DFG für die Förderung des Projekts „Ultradünne organische Schichten mit eingebauten Metallclustern in hochbrechender anorganischer Umgebung“, in dessen Rahmen die Grundlagen der LCalc und ECalc-Software geschaffen wurden.

Experimentelle Ergebnisse zu den optischen Konstanten plasma-ionengestützt abgeschiedener Oxidschichten sowie deren Reproduzierbarkeit wurden im Rahmen der InnoNet-Verbünde „IntIon“ und „TACo“ akkumuliert. Die Autoren danken dem Projektträger VDI/VDE-IT und dem BMWi für die finanzielle Unterstützung.

Das Forschungsvorhaben 15042 BR der Forschungsvereinigung Europäische Forschungsgesellschaft Dünne Schichten e.V., in dessen Rahmen die Untersuchungen zur Korrelation optischer und mechanischer Eigenschaften oxidischer Schichtmaterialien durchgeführt wurden, wurde im Programm zur Förderung der 'Industriellen

Gemeinschaftsforschung (IGF)' vom Bundesministerium für Wirtschaft und Technologie über die AiF finanziert.

Dem BMBF wird für die Förderung des „Sudekos"-Projekts gedankt, in dessen Rahmen die Dünnschichtproben auf Siliziumwafern präpariert worden sind. Die Proben selbst wurden durch Herrn Daniel Gäbler (XFAB AG) bereitgestellt.

Allen Partnern in den genannten Verbundprojekten sei nochmals für die Bereitstellung von Probenmaterial gedankt, welches unabhängig von der erfolgten oder nichterfolgten Aufnahme in diese Publikation von immenser Bedeutung für die Entwicklung und Anpassung der vorgestellten Methodik und die Klärung der aufgeführten Korrelationen war.

Besonderer Dank gilt auch Heidi Haase und Gisela Kühne (beide IOF) für eine Vielzahl von Messungen und technische Unterstützung, sowie Herrn Hagen Pauer (IOF) für die XRR-Messung an den Aluminiumproben auf Silizium. Die VN-Messeinsätze wurden von Herrn Hein Uhlig (IOF) entwickelt.

Ellipsometrische Messungen erfolgten durch Herrn Dr. Mykola Vinnichenko, Forschungszentrum Dresden.

7. Referenzen

[1] J. Strong, Procedure in Experimental Physics, 1st Ed. (Prentice Hall, New York, 1938), p.376

[2] http://www.labsphere.com/data/userFiles/Absolute Specular Reflectance Mmts at Fixed Angles.pdf

[3] http://las.perkinelmer.com/content/ApplicationNotes/APP_LAMBDAURADesignConsiderations.pdf

[4] COSP 2011, Vortragsfolien Wilbrandt

[5] M. Born, E. Wolf: Principles of Optics; Pergamon Press Oxford London Edinburgh New York Paris Frankfurt 1968

[6] R. Brendel, D. Bormann „An infrared dielectric function model for amorphous solids", J. Appl. Phys. 71, (1992), 1

[7] A. Franke, A. Stendal, O. Stenzel, C. von Borczyskowski „Gaussian quadrature approach to the calculation of the optical constants in the vicinity of inhomogeneously broadened absorption lines" Journ. Pure Appl. Opt. 5, (1996), 845

[8] J. H. Dobrowolski, F. C. Ho, A. Waldorf: Determination of optical constants of thin film coating materials based on inverse synthesis; Appl. Opt. 22, 1983, 3191

[9] M. Campoy-Quiles, J. Nelson, D.D.C. Bradley, P.G. Etchegoin „Dimensionality of electronic excitations in organic semiconductors: A dielectric function approach" Phys. Rev. B 76, (2007), 235206

[10] F. Urbach "The Long-Wavelength Edge of Photographic Sensitivity and of the Electronic Absorption of Solids" Phys. Rev. B 92, (1953), 1324

[11] N. F. Mott, E. A. Davis: Electronic Processes in Non-Crystalline Materials; Clarendon Press Oxford 1979

[12] G. D. Cody, T. Tiedje, B. Abeles, B. Brooks, and Y. Goldstein: Disorder and the Optical-Absorption Edge of Hydrogenated Amorphous Silicon; Phys. Rev. Lett. 47, 1981, 1480 - 1483

[13] O. Stenzel The Physics of Thin Film Optical Spectra: An Introduction, Springer Series in Surface Sciences 44, Springer Verlag Berlin Heidelberg 2005

[14] S. Wilbrandt „Optische Charakterisierung heterogener Dünnschichtsysteme mit molekularen Komponenten" Diplomarbeit, Technische Universität Chemnitz, 1998

[15] R. Petrich, O. Stenzel "Modeling of transmittance, reflectance and scattering of rough polycrystalline CVD diamond layers in application to the determination of optical constants" Optical Materials 3, (1994), 65

[16] B. Harbecke, B. Heinz, P. Grosse "Optical properties of thin films and the Berreman effect" Appl. Phys. A 38, (1985), 263

[17] K. Hehl, J. Bischoff Unigit Grating Solver (http://www.unigit.com/); Datenbank

[18] G.E. Jellison, Thin Solid Films 313/314, (1998), 33

[19] T.S. Moss *Optical Properties of Semiconductors* (London: Butterworths 1959) 48

[20] O. Stenzel, S. Wilbrandt, K. Friedrich, N. Kaiser, „Realistische Modellierung der NIR/VIS/UV-optischen Konstanten dünner optischer Schichten im Rahmen des Oszillatormodells", Vakuum in Forschung und Praxis 21(5) (2009) 15-23

[21] O. Stenzel, S. Wilbrandt , N. Kaiser, M. Vinnichenko, F. Munnik, A. Kolitsch, A. Chuvilin, U. Kaiser, J. Ebert, S. Jakobs, A. Kaless, S. Wüthrich, O. Treichel, B. Wunderlich, M. Bitzer, M. Grössl „The correlation between mechanical stress, thermal shift and refractive index in HfO_2, Nb_2O_5, Ta_2O_5 and SiO_2 layers and its relation to the layer porosity" Thin Solid Films 517, (2009), 6058

[22] COSP 2011, Vortragsfolien Stenzel

[23] L. D. Landau, E. M. Lifschitz: Lehrbuch der theoretischen Physik, Band VIII: Elektrodynamik der Kontinua; Akademie-Verlag Berlin 1985

[24] Karen Friedrich, Steffen Wilbrandt, Olaf Stenzel, Norbert Kaiser, Karl Heinz Hoffmann, „Computational Manufacturing of optical interference coatings: method, simulation results, and comparison with experiment", Applied Optics 49, (2010), 3150 – 3162