

УДК 535.51 : 621.382

О. Р. Баятова, А. С. Мардежов, Л. Д. Покровский, С. И. Чикичев,  
 В. А. Швец  
 (Новосибирск)

ИССЛЕДОВАНИЕ МИКРОРЕЛЬЕФА ПОВЕРХНОСТИ ПЛЕНОК HgTe  
 МЕТОДОМ ЭЛЛИПСОМЕТРИИ

Исследована морфология пленок теллурида ртути, выращенных эпитаксией из молекулярных пучков. Установлено, что поверхность пленок имеет развитый рельеф с характерными размерами до нескольких долей микрометра. Рассмотрены различные модели, позволяющие учесть шероховатость при интерпретации эллипсометрических измерений. Показано, что характерные размеры рельефа, определенные из эллипсометрических измерений и по данным электронной микроскопии, совпадают по порядку величины.

Метод эллипсометрии известен как один из эффективных методов контроля процессов при молекулярно-лучевой эпитаксии пленок [1—3]. Определение температуры, состава синтезируемых слоев, скорости роста — далеко не полный перечень возможностей метода. Однако его применение для контроля синтеза соединений CdHgTe оказалось существенно затруднено из-за развитого рельефа поверхности, возникающего при росте пленок. Влияние микрошероховатости хорошо иллюстрируется рис. 1, где представлены кривая зависимости эллипсометрических параметров от состава CdHgTe для объемных монокристаллических образцов (по данным работ [4, 5]) и результаты измерения эпитаксиальных пленок толщиной в несколько микрон. Экспериментальные данные для образцов различного состава смещены в плоскости эллипсометрических параметров ( $\psi$  и  $\Delta$ ) по отношению к градуировочной кривой и не обнаруживают корреляции с составом  $x$  (числа возле символов), который определялся по спектрам отражения. То, что столь существенные расхождения связаны именно с микрорельефом поверхности исследуемых пленок, подтверждается экспериментами по дифракции быстрых электронов, туннельной микроскопией, просвечивающей электронной микроскопией.

Известны несколько подходов, позволяющих учесть влияние шероховатости на эллипсометрические измерения:

1. Метод эффективной пленки [6, 7]. Шероховатая поверхность заменяется оптически однородным (или неоднородным) слоем с гладкими границами. Эффективные

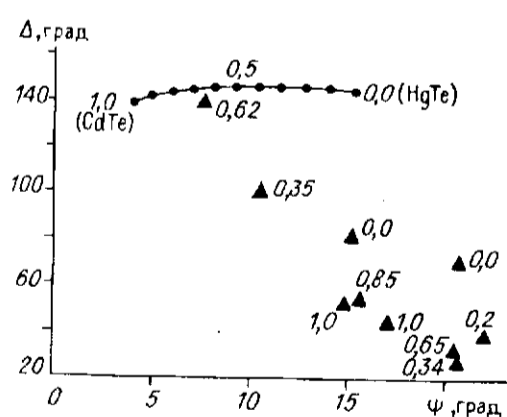


Рис. 1. Зависимость эллипсометрических параметров от состава Cd—Hg—Te:

сплошная кривая — для гладкой поверхности (числа возле кривой обозначают состав), треугольники — экспериментальные данные для эпитаксиальных пленок (состав указан рядом с символом). Угол падения света 70°

оптические постоянные такого слоя рассчитываются как для смеси материала подложки (объемная доля  $q$ ) с внешней средой (объемная доля  $1 - q$ ) по модели Бругемана или Максвелла — Гарнетта [8], а толщина слоя  $h$  берется равной характерной высоте шероховатости.

2. Скалярный метод. Подход развит в работе Охлидала и Лукеша [9], шероховатость описывается одним параметром — среднеквадратичным углом наклона статистически неровной поверхности  $\beta^2$ . В предположении  $\beta^2 \ll 1$  для эллипсометрических параметров шероховатой поверхности имеет место:

$$\operatorname{tg} \psi \cdot \exp(i\Delta) = \operatorname{tg} \psi_0 \cdot \exp(i\Delta_0)(1 - G \cdot \operatorname{tg}^2 \beta),$$

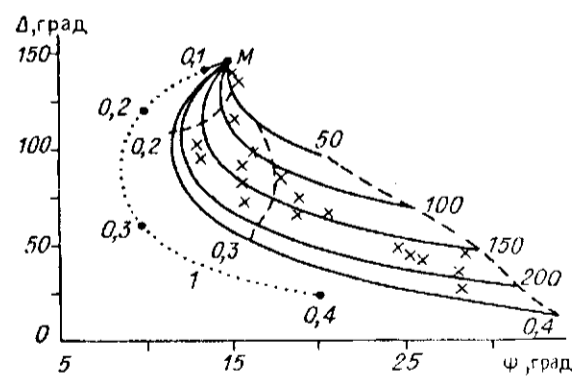
где  $\psi_0, \Delta_0$  — эллипсометрические параметры для гладкой поверхности;  $G$  — коэффициент пропорциональности, зависящий от оптических постоянных материала и угла падения света  $\Phi$ .

3. Векторная модель. В более поздних работах [10, 11] развита теория, в которой рельеф поверхности представлен случайной функцией  $\xi(x, y)$  ( $x, y$  — координаты в плоскости образца) с длиной корреляции  $L$  и среднеквадратичным отклонением от среднего уровня  $H$  (характерные размеры шероховатости в плоскости поверхности и перпендикулярно к ней). В рамках такого представления в приближении малых высот шероховатости ( $2\pi H/\lambda \ll 1$ ,  $\lambda$  — длина волны света) и углов наклона микроучастков поверхности ( $H/L \ll 1$ ) решена задача отражения поляризованного света и получены выражения для эллипсометрических параметров  $\psi, \Delta$ , которые зависят от  $H, L$  и вида автокорреляционной функции (АКФ)  $W(x, y)$  для случайной величины  $\xi$ .

Цель настоящей работы — исследование морфологии поверхности пленок HgTe, выращенных методом молекулярно-лучевой эпитаксии и выбор модели шероховатой поверхности, пригодной для интерпретации эллипсометрических измерений таких пленок.

Для реализации этой цели были разработаны программы, позволяющие рассчитать эллипсометрические параметры шероховатой поверхности для каждой из рассмотренных моделей, и проведены измерения эллипсометрических параметров серии образцов пленок HgTe толщиной несколько микрон, выращенных на подложке CdTe в установке молекулярно-лучевой эпитаксии. На рис. 2 приведены результаты таких измерений и соответствующие расчеты для шероховатой поверхности по скалярной модели (точечная кривая 1) и векторной (номограмма, представленная сплошными и штриховыми линиями). Точка  $M$  соответствует зеркально-гладкой поверхности образца. При расчете по векторной модели использована гауссовская форма АКФ  $W(x, y)$ . Следует отметить, что для большей части номограммы отношение  $H/L$ , которое должно быть малой величиной, составляет 0,2—0,4 (штриховые линии на рисунке). Таким образом, практически вся номограмма, за исключением некоторой области, прилегающей к точке  $M$ , дает, скорее, качественное описание эффекта шероховатости.

Рис. 2. Зависимость параметров  $\psi, \Delta$  для шероховатой поверхности HgTe: кривая 1 — расчет по скалярной модели, числа возле кривой соответствуют среднеквадратичному углу наклона микроучастков (рад). Сплошные и штриховые кривые — линии постоянных значений  $L$  (нм) и  $H/L$ , рассчитанные по векторной модели; крестики — эксперимент,  $\Phi = 70^\circ$



Несмотря на то что условия роста пленок были почти одинаковы, наблюдается большой разброс экспериментальных точек, при этом все они находятся в области номограммы со значениями  $L$  и  $H$  от 0 до 250 и 80 нм соответственно. В экспериментах по дифракции быстрых электронов на этих образцах наблюдаются рефлексы монокристаллического HgTe, а для некоторых из них также наличие поликристаллической фазы, однако корреляция между эллипсометрическими параметрами и степенью поликристалличности отсутствует. С другой стороны, измерения коррелируют с визуальной оценкой степени помутнения поверхности: для зеркальных поверхностей экспериментальные результаты располагаются ближе к исходной точке номограммы  $M$ , соответствующей гладкой поверхности. Это подтверждает, что наблюдаемый в эксперименте разброс эллипсометрических параметров связан в первую очередь с рельефом поверхности.

Кривая 1, рассчитанная по скалярной модели, не дает сколько-нибудь удовлетворительного согласия с экспериментом. Это объясняется тем, что в данном случае мы выходим за пределы применимости теории [9], основное ограничение которой заключается в требовании, чтобы характерный радиус кривизны рельефа поверхности  $r_c$  был много больше длины волны света  $\lambda$ . Учитывая, что  $r_c \sim (L^2 + H^2)/2H$  и принимая во внимание характерные значения  $L$  и  $H$ , на рис. 2 имеем обратное неравенство:  $r_c < \lambda$ .

Обратим внимание на тот факт, что кривая 1 ограничивает в плоскости  $\psi - \Delta$  область номограммы со стороны больших значений  $L$ . Это позволяет предположить, что результаты, полученные по скалярной модели, являются следствием векторной для частного случая, когда  $L \gg \lambda$ . Действительно, проводя в соответствующих формулах [11] разложение по малому параметру  $\lambda/L$  до членов  $\sim (\lambda/L)^2$ , получим

$$\operatorname{tg} \psi \cdot \exp(i\Delta) = \operatorname{tg} \psi_0 \cdot \exp(i\Delta_0) [1 + f(\Phi, \lambda)(H^2/L^2)].$$

Учитывая, что  $H^2/L^2 \approx \beta^2$ , приходим в итоге к выражению, аналогичному формуле скалярной модели.

Представляет интерес сравнить полученные результаты с расчетами по методу эффективной пленки. Линии 1—4 на рис. 3 — кривые равной толщины эффективной пленки  $h = \text{const}$ , которые рассчитаны при изменении коэффициента заполнения  $q$  от 0 до 1. Для малых толщин эффективной пленки (т. е. размеров шероховатости) кривые 1, 2 на некотором участке близки к аналогичным кривым  $H = \text{const}$  (5, 6), рассчитанным по 3-й модели, однако с увеличением размеров шероховатости это соответствие исчезает (кривые 3, 4 и 7, 8). В той области номограммы, где расположены экспериментальные результаты, расхождения между соответствующими параметрами моделей в количественном выражении не

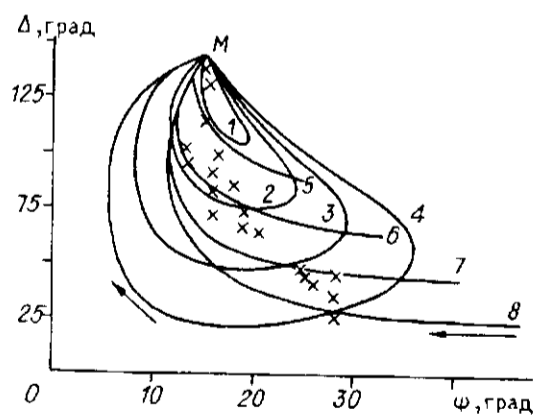


Рис. 3. Сравнение модели эффективной пленки (кривые 1—4) и векторной (5—8) с результатами измерения шероховатой поверхности HgTe (крестики). Толщина эффективной пленки для 1-й модели и среднеквадратичная высота рельефа для 3-й модели равны: 20 (кривые 1, 5), 40 (2, 6), 60 (3, 7) и 80 нм (4, 8) соответственно. Стрелками показано направление увеличения  $q$  и  $L$  для 1-й и 3-й моделей

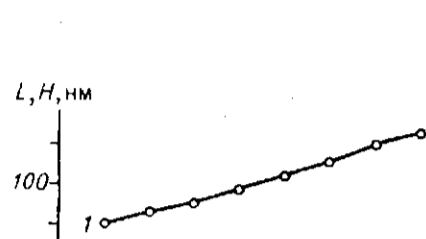


Рис. 4. Экспериментально определенные значения корреляционной длины  $L$  (кривая 1) и высоты  $H$  (2) для шероховатой поверхности HgTe в зависимости от угла падения света

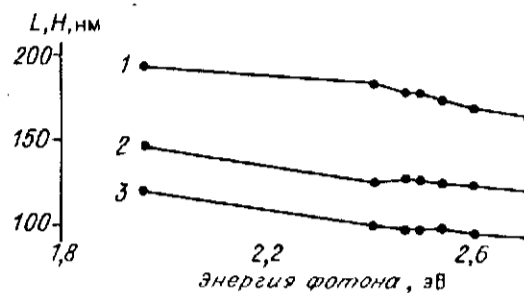


Рис. 5. Зависимость корреляционной длины  $L$  (1—3) и высоты  $H$  (4—6) от энергии фотона зондирующего излучения: кривые 1 и 4, 2 и 5, 3 и 6 относятся к трем различным образцам

превышают 20%. Таким образом, метод эффективной пленки в данном случае позволяет проследить основные особенности поведения эллипсометрических параметров и оценить высоту мелкомасштабной шероховатости.

Из проведенного выше сравнения векторная модель представляется наиболее корректной и ближе всего соответствует реальной ситуации, однако открытым остается вопрос, насколько точно такой подход позволяет связать эллипсометрические параметры со статистическими характеристиками шероховатости — среднеквадратичной высотой и корреляционной длиной. Ответ на этот вопрос могло бы дать прямое сравнение измеренных значений  $\psi$ ,  $\Delta$  с их расчетными аналогами. Однако для расчета последних необходимо знать профиль рельефа в микромасштабе, определение которого представляет собой довольно сложную задачу. Косвенным образом ответ можно получить из анализа внутренней самосогласованности теории и экспериментальных данных, полученных при изменении условий эксперимента (например, угла падения света). Параметры шероховатости, определенные на основе данной модели в случае ее корректности, не должны зависеть от условий эксперимента, поскольку являются характеристикой образца.

Детальные исследования пленок HgTe показывают, что, к сожалению, в рамках рассматриваемого подхода не удастся получить самосогласованного решения для параметров шероховатости: определяемые из измерений значения  $L$  и  $H$  монотонно зависят от угла падения света (рис. 4), то же самое обнаруживается и при изменении длины волны света (рис. 5). Этот артефакт наблюдается на большом количестве образцов и свидетельствует, что используемые модельные представления или основные предпосылки теоретического подхода не в полной мере соответствуют реальной ситуации.

Некоторый произвол в расчетах существует из-за выбора корреляционной функции. Используемая нами гауссовская зависимость  $W(r) = \exp(-r^2/L^2)$  на первый взгляд кажется вполне приемлемым допущением, однако такой вид  $W(r)$  характеризуется одним размером в плоскости поверхности —  $L$  — и не отражает случая многомасштабной шероховатости (например, наличия мелких зерен на фоне более крупных неровностей).

Прояснить картину помогают микрофотографии реплик поверхности пленок HgTe, полученные на электронном микроскопе. Было исследовано более десятка образцов, которые по данным эллипсометрии имеют различную степень шероховатости поверхности. На рис. 6, а, б приведены характерные реплики (угол отклонения  $26^\circ$ ) для образцов с относительно гладкой поверхностью ( $\psi = 15^\circ 20'$ ,  $\Delta = 141^\circ$ ) и с развитым рельефом ( $\psi = 25^\circ 45'$ ,  $\Delta = 32^\circ$ ).

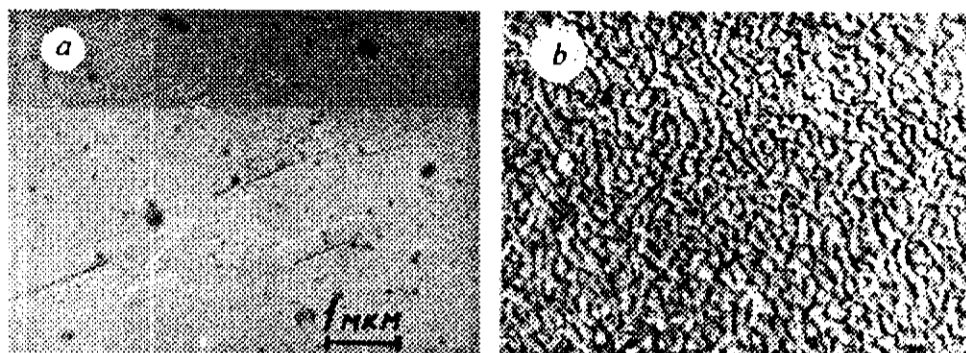


Рис. 6. Реплики поверхности пленок HgTe

Общая тенденция в изменении рельефа по образцам такова. Образцы с высоким значением  $\Delta \sim 130\text{--}140^\circ$  характеризуются наличием на ровной поверхности случайным образом расположенных дефектов поверхности: канавок, ямок или зерен размером от 0,05 до 0,5 мкм (см. рис. 6, а). При этом типично присутствие различных по масштабу дефектов (многомасштабная шероховатость). По мере отклонения  $\psi$  и  $\Delta$  от значений, характерных для гладкой поверхности, увеличиваются одновременно как размеры дефектов, так и плотность их распределения.

Для статистического описания такого рельефа необходимо большое количество параметров, характеризующих размеры дефектов в плоскости образца: средний размер поверхностных образований (для анизотропных образований два размера — их длина и ширина), среднее расстояние между ними, причем для многомасштабной шероховатости количество этих параметров кратно увеличивается. Все это затрудняет моделирование и расчет эллипсометрических параметров для такой поверхности, так как очевидно, что гауссовская форма АКФ в этом случае может лишь приблизительно соответствовать действительности, а определение точной зависимости  $W(r)$  практически невозможно из-за многопараметричности этой функции.

Образцы, измеренные значения  $\psi$ ,  $\Delta$  для которых наиболее сильно отстоят от исходной точки номограммы  $M$  ( $\psi = 20\text{--}25^\circ$ ,  $\Delta = 30\text{--}70^\circ$ ), имеют четко выраженный рельеф с характерными размерами  $\sim 0,1$  мкм (см. рис. 6, б)\*. Такому рельефу, по-видимому, в наибольшей степени соответствует гауссовская форма зависимости  $W(r)$ , и поэтому для этих образцов представляет интерес сравнить размеры шероховатости, полученные различными методами.

В таблице приведены характерные размеры рельефа для трех таких образцов, определенные из эллипсометрических измерений с использованием моделей 1, 3 и по репликам. В последнем случае величина  $L_p$  определялась как

\* Интересно отметить, что представленный на рис. 6, б рельеф имеет некоторую анизотропию, оси которой расположены приблизительно по диагонали рисунка. Это проявляется также и при эллипсометрических измерениях: параметры  $\psi$  и  $\Delta$  обнаруживают периодическую зависимость от азимута падающего луча с амплитудами  $\delta\psi \sim 1^\circ$  и  $\delta\Delta \sim 10^\circ$ , причем максимумы и минимумы в зависимостях  $\psi$  и  $\Delta$  от азимута совпадают с направлениями кристаллографических осей подложки. Аналогичный эффект был обнаружен авторами работы [12] для пленок InGaAs, который они объясняли за счет анизотропии оптических свойств пленки. На наш взгляд, это вполне могло быть и проявлением анизотропии поверхностного рельефа.

среднее расстояние между вершиной и впадиной, а  $H_p$  — как половина средней разности их высот (в таблице приведена нижняя оценка для  $H_p$ ). Несмотря на то что соответствующие характеристики заметно различаются, наблюдается их корреляция от образца к образцу.

Вообще говоря, количественное сравнение величин  $h$ ,  $H$  с  $H_p$  и  $L$  с  $L_p$  не совсем корректно, так как они несколько различны по физическому смыслу. Более правильно сравнивать между собой автокорреляционные функции. В связи с этим была предпринята попытка оценить форму и полуширину АКФ по фотографиям реплик для двух таких образцов. Следует отметить, что точно восстановить профиль поверхности по реплике не представляется возможным, поэтому мы рассмотрели упрощенную модель шероховатой поверхности: профиль моделировался пилообразной функцией с одинаковой высотой «зубьев», а размеры участков положительной и отрицательной крутизны соответствовали темным и светлым участкам изображения фотографии. Для таких случайных функций, полученных путем статистической обработки фотографий, были найдены АКФ для двух образцов (рис. 7). Сравнение восстановленных таким образом АКФ с модельными гауссовскими, параметры которых определялись из эллипсометрических измерений, показывает, что полуширина модельной АКФ приблизительно вдвое больше полуширины, соответствующей восстановленной функции. При этом восстановленная АКФ в отличие от модельной имеет область антикорреляции, где  $W(r) < 0$  — следствие квазипериодичности рельефа поверхности.

Таким образом, количественная обработка снимков рельефа поверхности показывает, что гауссовская форма АКФ является лишь качественным приближением к реальной ситуации. В связи с этим мы провели аналогичные расчеты номограмм и анализ экспериментальных эллипсометрических данных для АКФ двух видов [10]:

$$W(r) = (L_1 \exp(-r/L_1) - L_2 \exp(-r/L_2)) / (L_1 - L_2),$$

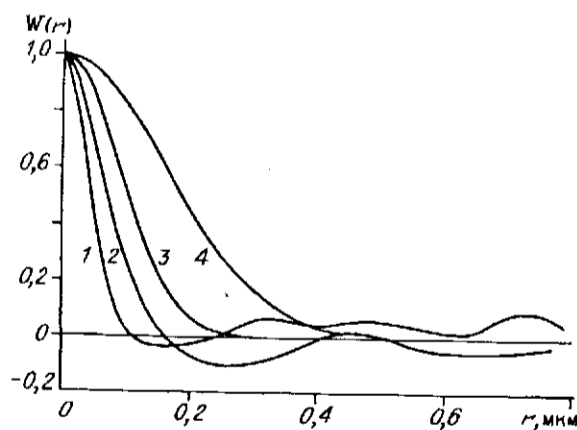


Рис. 7. Автокорреляционные функции шероховатой поверхности для двух образцов (1, 3 и 2, 4 соответственно): кривые 1, 2 определены по фотографиям реплик, 3, 4 — гауссовская форма АКФ с полушириной, найденной из эллипсометрических измерений

$$W(r) = \cos(\alpha r) \cdot \exp(-r/L).$$

Такие зависимости позволяют учесть два характерных размера шероховатости в плоскости поверхности, кроме того, вторая из представленных функций учитывает эффект антикорреляции. Используя величины  $L_1$ ,  $L_2$  и  $\alpha$ ,  $L$  как подгоночные параметры, можно в принципе добиться несколько лучшего согласия АКФ, найденных из эллипсометрических измерений и по данным электронной микроскопии, однако ни для одной из рассмотренных нами АКФ не удастся найти самосогласованного решения, подгоночные параметры для которого не зависели бы от условий измерения (угла падения и длины волны света).

Такой результат связан, по-видимому, с тем, что параметры шероховатости исследуемых образцов лежат вблизи предела применимости используемой теории. Действительно, для рассмотренных выше образцов малые параметры, по которым ведется разложение, равны:  $H/L = 0,3$ , а  $2\pi H/\lambda = 0,4$  и  $0,8$  соответственно. Тем не менее тот факт, что характерные размеры шероховатости, определенные методом эллипсометрии и по данным электронной микроскопии, совпадают между собой по порядку величины, дает основание использовать метод эллипсометрии для полуколичественной характеристики сильно шероховатых поверхностей HgTe.

#### ВЫВОДЫ

Выращенные методом молекулярно-лучевой эпитаксии пленки HgTe при незначительном отклонении технологии обнаруживают развитый рельеф поверхности с характерными размерами до 0,1 мкм, и этот фактор играет определяющую роль при измерении эллипсометрических параметров.

Скалярная модель учета шероховатости не может быть использована для исследования рассматриваемых объектов из-за невыполнения условия малости длины волны света по сравнению с радиусом кривизны шероховатой поверхности.

Метод эффективной пленки позволяет качественно учесть мелкомасштабную шероховатость при эллипсометрических исследованиях пленок.

Векторная модель учета шероховатости является наиболее приемлемой для рассматриваемых объектов и позволяет определить порядок величины характерных размеров шероховатости в плоскости поверхности и перпендикулярно к ней. Количественное использование этой модели затруднено из-за незнания вида АКФ, а для сильно шероховатых поверхностей также из-за достижения предела применимости теории.

Авторы выражают благодарность Ю. Г. Сидорову за проявленный интерес к работе и обсуждение материала, Л. М. Остаповскому и И. Е. Нису за оказанную помощь при выращивании пленок HgTe.

#### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Theeten J. B., Hottier F., Hallais H. Ellipsometric assesment of (Ga,Al)As/GaAs epitaxial layers during their growth in an organometallic VPE system // *J. Cryst. Growth.*—1979.—46.—P. 245.
2. Aspnes D. E., Quinn W. E., Gregory S. Optical control of growth of  $Al_xGa_{1-x}As$  by organometallic molecular beam epitaxy // *Appl. Phys. Lett.*—1990.—57(25).—P. 2707.
3. Мардежов А. С., Чикичев С. И., Швец В. А. Метод эллипсометрии в технологии молекулярно-лучевой эпитаксии соединений  $A_2B_6$  и  $A_3B_5$  и их композиций // *Эллипсометрия: теория, методы, приложения.*—Новосибирск: Наука, 1991.
4. Arvin H., Aspnes D. E. Nondestructive analysis of  $Hg_{1-x}Cd_xTe$  ( $x = 0,00, 0,20, 0,29$  and  $1,00$ ) by spectroscopic ellipsometry. II. Substrate, oxide, and interface properties // *J. Vac. Sci. Technol.*—1984.—A2.—P. 1316.

5. Vina L., Umbach C., Cardona M., Vodopjanov L. Ellipsometric studies of electronic interband transitions in  $Cd_xHg_{1-x}Te$  // Phys. Rev. B.—1984.—29.—P. 6752.
6. Аззам Р., Башара Н. Эллипсометрия и поляризованный свет.—М.: Мир, 1981.
7. K. Brudzewski K. Effect of surface roughness on change of polarization state of light reflected from silicon and germanium // Appl. Opt.—1976.—15, N 1.—P. 115.
8. Aspnes D. E. Optical properties of thin films // Thin Solid Films.—1982.—89.—P. 249.
9. Ohlidal I., Lukes F. Ellipsometric parameters of rough surfaces and of a system substrate — thin film with rough boundaries // Optica Acta.—1972.—19, N 10.—P. 817.
10. Антонов В. А., Пшеницын В. И. Отражение поляризованного света шероховатой поверхностью // Оптика и спектроскопия.—1984.—56, вып. 1.
11. Брагинский Л. С., Гишинский И. А., Свиташева С. Н. Отражение света шероховатой поверхностью: интерпретация эллипсометрических измерений // ДАН СССР.—1987.—293, № 5.
12. Bennett V. R., del Alamo J. A. Optical anisotropy in mismatched InGaAs/InP heterostructures // Appl. Phys. Lett.—1991.—58(25)—P. 2978.

Поступила в редакцию 1 декабря 1992 г.

23

---

Реклама продукции в нашем журнале — залог Вашего успеха!