

О.В. МАКАРЕНКО, Л.В. ПОПЕРЕНКО, О.І. ЗАВАЛІСТІЙ, А.Л. ЯМПОЛЬСЬКИЙ  
Київський національний університет імені Т. Шевченка,  
фізичний факультет, кафедра оптики  
(Вул. Володимирська, 64/13, Київ 01601)

УДК 535.321.9, 539.211,  
539.213.2, 539.219.1

## ЕЛІПСОМЕТРИЧНА ДІАГНОСТИКА ПОВЕРХНЕВОГО ШАРУ ОПТИЧНОГО СКЛА

---

*Розглянуто оптичні властивості перехідного порушеного шару на поверхні оптичного скла. Найчастіше поверхні оптичних елементів вважають ідеальними, хоча для точних фізичних експериментів чи новітніх технологічних задач реальна неоднорідна структура поверхні може мати суттєвий вплив. До того ж, моделювання будови поверхневого шару, його оптичних характеристик і дослідження питання про можливість їх знаходження за результатами оптичних досліджень становлять і теоретичний інтерес, що й з'ясовувано у даній роботі. Було проведено еліпсометричні вимірювання зразків оптичного скла, що містять порушений шар. Для моделювання кутових залежностей еліпсометричних параметрів  $\tan(\psi)$  і  $\cos(\Delta)$  приповерхневу область зразка представляли як послідовність 500 тонких шарів і застосовували матричний метод розрахунку відбивання світла такою структурою із врахуванням явища інтерференції. Було взято 5 моделей оптичного профілю неоднорідного шару, параметри яких оптимізували до досягнення мінімального значення цільової функції відхилення між розрахованими та вимірними даними. Встановлено, що теоретичні моделі з врахуванням неоднорідного шару точніше описують оптичні властивості зразків, але все ж розв'язок оберненої задачі еліпсометрії не є однозначним. І хоча для остаточного вибору моделі, адекватної реальній морфологічній будові порушеного шару, необхідні додаткові вимірювання, ключова перевага використаного методу полягає в тому, що він безпосередньо забезпечує реєстрацію саме оптичного відгуку системи.*

*Ключові слова:* еліпсометрія, скло, неоднорідний шар, оптичний профіль.

### 1. Вступ

Питанню контролю якості оптичних поверхневих шарів на склі та діелектриках присвячена значна кількість робіт. Окрім суто прикладного аспекту впливу поверхневих шарів на оптичні властивості поверхонь (наприклад, внутрішньорезонаторних елементів йонних та ексимерних лазерів [1], градієнтних оптичних елементів [2, 3, 4], оптичних контактів [5, 6], провітлювальних покриттів [3]) неабиякий науковий інтерес становить з'ясування особливостей будови та оптичного відгуку цих шарів.

Останнє можливо вирішити лише при поєднанні і співставленні результатів різних методик, таких як еліпсометрія, оже-спектроскопія, профілометрія, пошарове стравлювання тощо [7, 2, 8].

Переваги еліпсометричного методу дослідження поверхні твердого тіла полягають в тому, що він є неруйнівним, відносно простим у реалізації і дуже чутливим до структурних змін у поверхневому шарі. Однак за будь-яких обставин цей метод вимагає розгляду певних припущень і застосування відповідної теоретичної моделі, не гарантуючи єдиності і однозначності одержаного розв'язку. Неадекватність вибраної моделі поверхневого шару спричинює труднощі у розв'язанні оберненої задачі елі-

псометрії [9]. Тому актуальним завданням у подібних дослідженнях є необхідність більш детального з'ясування питання щодо однорідності поверхневого шару, визначення його товщини та розподілу показника заломлення за глибиною. Зважаючи на це, метою даної роботи став розв'язок оберненої задачі еліпсометрії для оптичного скла, якому притаманний певний перехідний шар, і порівняння результатів розрахунків за кількома припущеннями стосовно морфології поверхневого шару з використанням декількох теоретичних моделей щодо його структури.

## 2. Експеримент

Об'єктами дослідження в даній роботі вибрано зразки оптичного скла, виготовлені у вигляді оптичних призм з полірованими гранями. На першому етапі експерименту були визначені показники заломлення призм як виробів з масивного матеріалу (скла). Для цього був використаний гоніометричний метод вимірювання кута найменшого відхилення для променя, що пройшов крізь призму [10]. Цей метод є типовим для подібних задач і забезпечує точність отриманого результату не гірше 0,01%. Одержані результати добре узгоджуються з паспортними значеннями для заданих марок скла (табл. 1).

На другому етапі експерименту, використовуючи автоматизовану гоніополяриметричну установку, описану в [11], проведено еліпсометричні вимірювання світла, яке було відбите від полірованої поверхні призми. В результаті були визначені залежності параметрів  $\psi$  (азимута відновленої лінійної поляризації) та  $\Delta$  (зсуву фаз між  $p$ - та  $s$ -компонентами відбитого світла) від кута падіння  $\theta$  зовні на грань призми. Вимірювання проводили за схемою PSA (Polarizer-Sample-Analyzer), користуючись методикою аналізатора, що обертається. Використано джерело світла з довжиною

Таблиця 1. Виміряні показники заломлення зразків оптичного скла

Зразок	Марка скла	Показник заломлення $n$ ( $\lambda = 625$ нм)
Призма 1	Ф1	1,610
Призма 2	ТФ3	1,713
Призма 3	К8	1,515

хвилі джерела випромінювання  $\lambda = 625$  нм, а напівширина (Full Width at Half Maximum – FWHM) його відповідної смуги становить 10 нм.

## 3. Теоретичне підґрунтя

Для вирішення цієї задачі необхідно було вибрати для об'єкта фізичну модель та розв'язати обернену задачу еліпсометрії, оптимізуючи її параметри. В еліпсометрії, як і в інших оптичних методах, адекватність моделі відбивної системи об'єкта дослідження оцінюється на основі принципу максимальної правдоподібності за допомогою цільової функції  $F(\Delta^{\text{exp}}, \psi^{\text{exp}}, \Delta^{\text{theor}}, \psi^{\text{theor}}, m)$ , значення якої залежить не лише від експериментальних та теоретичних (розрахункових) даних досліджуваної відбивної системи, а й від виду вибраної моделі поверхневого шару з показником заломлення  $n_m(z)$ , де  $m = \overline{1,5}$  – порядковий номер використаних нами теоретичних моделей [1]. Зокрема, в даній роботі було використано таку цільову функцію:

$$F = \frac{1}{M} \sum_{j=1}^M \left[ (\cos(\Delta_j)^{\text{theor}} - \cos(\Delta_j)^{\text{exp}})^2 + (\tan(\psi_j)^{\text{theor}} - \tan(\psi_j)^{\text{exp}})^2 \right],$$

де  $M$  – кількість експериментальних вимірювань.

Полірування оптичних деталей за стандартною технологією та їхня механічна обробка призводить до утворення поверхневого шару із зруйнованою структурою і до того ж деформованою й напруженою, з характеристиками, які відмінні від глибинних [5, 6]. Часто для їх уникнення проводять термічний відпал. Тому при еліпсометричному аналізі використовувався такий математичний опис оптичного профіля [1]:

$$\varepsilon(z) = \varepsilon_1 + (\varepsilon_0 - \varepsilon_1) f_m(qz),$$

де  $q = 1/d$  – характерна обернена товщина поверхневого шару,  $\varepsilon_0$  – діелектрична проникність на межі “зовнішнє середовище – поверхневий шар”,  $\varepsilon_1$  – діелектрична проникність в товщі скла, а  $f_m(qz)$  – характеристична функція, яка відповідає  $m$ -й моделі. Діелектричні проникності пов'язані з відповідними показниками заломлення співвідношенням  $n_i = \text{Re}\sqrt{\varepsilon_i}$  ( $i = 0, 1$ ). У нашій роботі такими моделями були вибрані такі:

1. Оптично однорідний зразок скла без поверхневого шару, тобто  $f_1(1z) = 0$ , який характеризується єдиним значенням показника заломлення  $n_1$ .

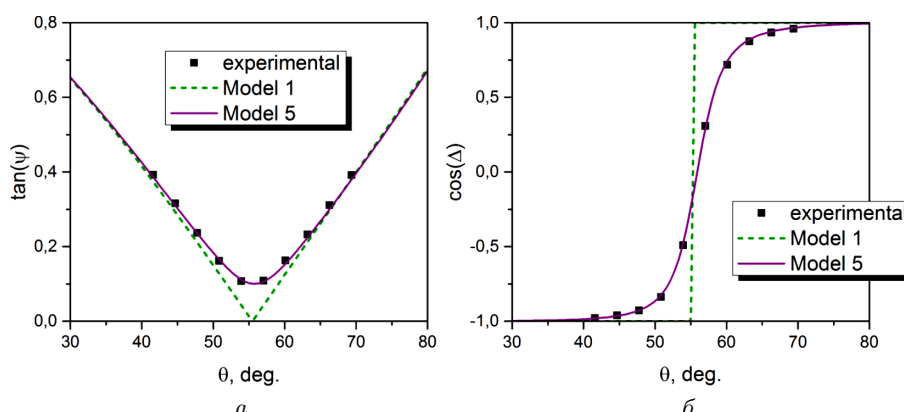


Рис. 1. Експериментальні та змодельовані кутові залежності еліпсометричних параметрів  $\tan(\psi)$  (а) і  $\cos(\Delta)$  (б) для зразка оптичного скла ТФЗ (Prism 2)

2. Оптично однорідний ефективний поверхневий шар, що знаходиться на підкладці, і тоді  $f_2(qz) = 1$  при  $0 < z < d$ .

3. Неоднорідний поверхневий шар, показник заломлення якого з глибиною змінюється за лінійним законом:  $f_3(qz) = (1 - qz)$  при  $0 < z < d$ .

4. Неоднорідний поверхневий шар, показник заломлення якого з глибиною змінюється експоненційно:  $f_4(qz) = \exp(-qz)$  при  $0 < z < \infty$ .

5. Неоднорідний поверхневий шар, показник заломлення якого з глибиною змінюється немонотонно за законом, якому відповідає характеристична функція  $f_5(qz) = (1 - qz) \exp(-qz)$ ,  $0 < z < \infty$ .

Для моделей 2–5 значення показника заломлення скла при збільшенні відстані від поверхні вглиб зразка має асимптотично наближатися до стандартного (паспортного) значення відповідного сорту скла (див. табл. 1). Слід підкреслити, що метод вимірювання показника заломлення за кутом найменшого відхилення дає в результаті саме цей глибинний показник заломлення, оскільки за законом заломлення поверхневі шари на склі не впливають на нахил променя, що поширюється в його товщі. Однак підкреслимо, що в спектроскопії порушеного повного внутрішнього відбивання значення показника заломлення в поверхневому шару повинно бути коректно враховано.

Теоретичне обчислення залежностей  $\psi(\theta)$  і  $\Delta(\theta)$  здійснювалося за допомогою матричного методу розрахунку оптичних характеристик при проходженні світла в багат шарових системах, детально описаного в [12]. Цей метод базується на знаходженні стаціонарних амплітуд напруженості еле-

ктричного поля на межах поділу середовищ з урахуванням явища інтерференції хвиль при багаторазовому відбиванні.

Приповерхневу область зразків оптичного скла представляємо у вигляді послідовності  $k = 500$  тонких шарів, параметри яких визначаються згідно з зазначеними вище 5-ма моделями. У такому підході розраховували залежності  $\psi(\theta)$  і  $\Delta(\theta)$  та значення цільової функції, якою описують їхнє відхилення від експериментальних даних, тобто функції  $F$ . Параметри кожної моделі були оптимізовані за умови мінімізації за значенням функції  $F$ , в результаті чого одержано шуканий розподіл показника заломлення у зразку за глибиною.

#### 4. Результати та їх обговорення

Експериментально виміряні і одержані за результатами моделювання залежності  $\tan(\psi)$  і  $\cos(\Delta)$  від кута падіння зондового променя  $\theta$  наведені на рис. 1. Оскільки всі вони мають подібний вигляд, в ролі типового прикладу наведено такі залежності лише для призми 2. Також, оскільки різниця між відповідними кривими, розрахованими з використанням моделей 2–5, візуально незначна, для порівняння графіків показано лише криві для моделей 1 і 5.

Як видно з рис. 1, залежність  $\psi(\theta)$  при куті Брюстера в околі значення  $\theta = 55^\circ$  не досягає нуля. Це свідчить про залишкову еліптичність у відбитому світлі, що не відповідає відбиванню світла від ідеальної межі повітря–скло, яке описують формули Френеля. Така поведінка залежності  $\psi(\theta)$  і відповідний інтервал  $\Delta\theta$  (розкид кутів падіння  $\theta$ , в ме-

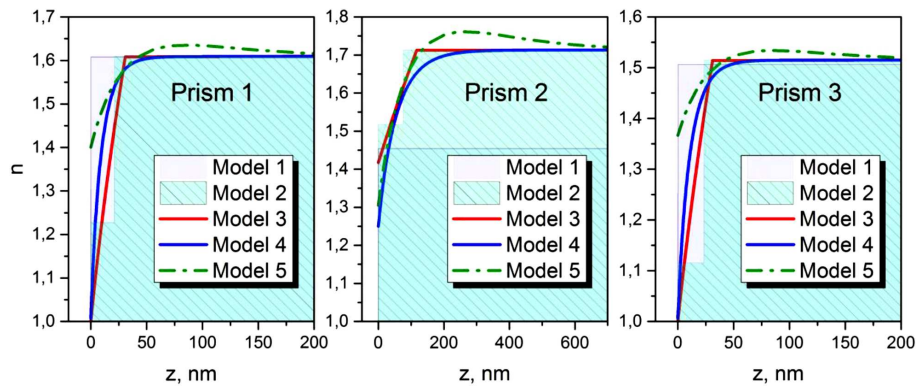


Рис. 2. Профілі показника заломлення  $n$  за глибиною  $z$  зразків оптичного скла Ф1 (Prism 1), ТФЗ (Prism 2) і К8 (Prism 3), розраховані за 5-ма теоретичними моделями

жах якого фаза спадає від  $\pi$  до 0) повністю характеризують оптичний відгук поверхневого шару.

Одержані в результаті застосування вищезазначених теоретичних моделей профілі показника заломлення для трьох зразків оптичного скла наведено на рис. 2. Відповідні товщини поверхневих шарів  $d$ , початкові показники заломлення  $n_{start}$ ,

Таблиця 2. Результати теоретичного моделювання поверхневих шарів зразків оптичного скла

Зразок	Призма 1	Призма 2	Призма 3
Модель 1			
$F(m = 1)$	3,08e-2	8,86e-2	4,08e-2
$d$ , нм	-	-	-
$n_{start}$	1,608	1,454	1,505
Модель 2			
$F(m = 2)$	2,06e-4	3,01e-4	1,68e-4
$d$ , нм	20,7	76,0	22,9
$n_{start}$	1,227	1,518	1,115
$\eta$	0,39	0,74	0,24
Модель 3			
$F(m = 3)$	2,51e-4	2,58e-4	4,35e-4
$d$ , нм	30,3	113,4	30,6
$n_{start}$	1,001	1,418	1,001
Модель 4			
$F(m = 4)$	8,21e-4	2,31e-4	2,03e-3
$d$ , нм	44,4	234,7	49,2
$n_{start}$	1,008	1,250	1,006
Модель 5			
$F(m = 5)$	2,29e-4	2,19e-4	1,94e-4
$d$ , нм	189,8	686,4	170,4
$n_{start}$	1,400	1,305	1,367

а також значення цільових функцій  $F$  зведено у табл. 2. Для 3, 4 і 5 моделей товщиною поверхневого шару  $d$  вважали глибину  $z$ , на якій показник заломлення відрізняється від кінцевого, заданого згідно з табл. 1, на 0,5%. Початковий показник заломлення  $n_{start}$  відноситься до першого з 500 шарів, якими моделюється приповерхнева область оптичного скла. Для 2-ї моделі  $n_{start}$  відповідає показнику заломлення ефективного шару. Крок розбиття у процесі розрахунків встановлюється таким, щоб сумарна глибина, охоплена цими 500-ма шарами, за своєю величиною майже відповідала заданій товщині  $d$ .

Аналізуючи отримані результати, можна помітити, що модель 1 найгірше описує оптичні властивості зразків, оскільки для неї значення цільової функції  $F$  найбільше. Зразу підкреслимо, що це підтверджує припущення про наявність перехідного поверхневого шару на оптичному склі з відмінними від об'єму оптичними параметрами. Особливо вирізняється результат моделі 1 для призми 2 – показник заломлення стає суттєво заниженим. Це може бути пояснено особливостями хімічної складової по впливу на поверхню скла при обробці саме важких флінтів, до яких належить і ТФЗ (більш інтенсивне вилугування скла). Кращими стають моделі 2–5, різниця між результатами застосування яких з точки зору мінімізації цільової функції похибки  $F$  є незначною. Проте, товщина шару відрізняється при цьому суттєво: для моделі 5 вона становить  $\sim 200\text{--}700$  нм, тоді як для моделей 2–4 оцінюється величиною  $\sim 20\text{--}200$  нм. До того ж, відрізняються і одержані значення  $n_0$ . В зв'язку з цим постає питання стосовно адекватності вибра-

них моделей реальній структурі зразків та необхідність введення в них певних корекцій.

В окремих роботах розглядалися варіанти будови шорсткого поверхневого шару. Так, наприклад, модель ефективного шару на кремнії розглянута в роботі [13]. При цьому поверхню зразка вважали шорсткою, а перехідний шар як суміш: частково заповненим повітрям, а частково – кремнієм. Відповідним долям цих середовищ у шарі в рамках моделі ефективного середовища Бруггемана співставляють певні числа заповнення. Тому у спрощеному випадку такого ефективного двокомпонентного шару маємо співвідношення [14]:

$$\eta \frac{\varepsilon_1 - \varepsilon^{\text{eff}}}{\varepsilon_1 + 2\varepsilon^{\text{eff}}} + (1 - \eta) \frac{\varepsilon_0 - \varepsilon^{\text{eff}}}{\varepsilon_0 + 2\varepsilon^{\text{eff}}} = 0,$$

де  $\eta$  – це число заповнення ефективного шару склом,  $\varepsilon_1$ ,  $\varepsilon_0$  та  $\varepsilon^{\text{eff}}$  – відповідно діелектричні проникності скла, середовища (повітря) та ефективного шару.

Товщини ефективних шарів на склі, знайдені нами при такому підході, добре узгоджуються з середньоквадратичними значеннями шорсткості поверхонь, які відповідають 11–13 класу шорсткості [15]. Відповідні числа заповнення ефективного шару  $\eta$  також зазначені у табл. 2.

Про тришарову модель поверхні оптичного скла йдеться в роботі [5], автори якої пов'язують неоднорідність поверхневого шару з шорсткістю поверхні, наявністю на ній тріщин, певним розрихленням чи ущільненням структури внаслідок локальних деформацій або вилуговуванням скла на різній глибині внаслідок хіміко-механічної дії на поверхню при її обробці.

Розподіл показника заломлення  $n(z)$  за глибиною, одержаний нами з моделі 5, а також отримана оціночна товщина шару, добре узгоджуються з результатами робіт [1, 6, 16]. Однак, остаточна відповідь на питання стосовно точніших параметрів і оптичного відгуку сформованого поверхневого шару оптичного скла, його реальної товщини і ступеня однорідності, безумовно, не може бути одержана лише з одних результатів еліпсометрії. Для цього були б доречними дослідження з використанням пошарового стравлення вглиб і допоміжних методів аналізу морфологічної будови поверхні оптичного скла. За таких умов методи оже-спектроскопії та профілометрії надали б можливість остаточно вибрати з-поміж запропонованих теорети-

чних моделей найбільш відповідну по відношенню до тієї, яка відповідає реальній морфології шару. Менше з тим, спираючись на висновки робіт [1, 6], найбільш адекватною моделлю щодо поверхневого шару оптичного скла є модель 5, оскільки вона враховує особливості його формування в процесі обробки скла і доведення фізико-хімічного стану його поверхні до 13–14 класу чистоти [15].

## 5. Висновки

Проведеною еліпсометричною діагностикою зразків оптичного скла зафіксовано наявність у ньому перехідного поверхневого шару, викликаного механічною обробкою та поліруванням зразка масивного матеріалу при виготовленні оптичних деталей.

Порівняння результатів розв'язку оберненої задачі для встановлення оптичних характеристик за 5-ма різними моделями таких шарів свідчить про їхню неоднорідну (пошарову) будову.

Результати розрахунку, отримані для різних профілів показника заломлення з глибиною, надають значення товщин поверхневого шару, які можуть змінюватись від десятків до кількох сотень нанометрів, але лише для моделі 5 товщини шару в 190–690 нм узгоджуються з відповідними величинами для поверхонь скла, що були отримані з використанням стандартних технологій обробки.

Незважаючи на добру збіжність результатів стосовно опису оптичного відгуку перехідного поверхневого шару, отриманих за моделлю 5 з даними фундаментальних досліджень, де встановлено немонотонну зміну відгуку за глибиною, остаточна відповідь на питання стосовно морфологічної будови перехідного поверхневого шару потребує використання прецизійних методів досліджень атомної будови шару вглиб. Але використаний нами метод еліпсометричної діагностики поверхні має одну ключову перевагу порівняно з такими методами визначення морфології і складу поверхневого шару як атомно-силова мікроскопія і оже-спектроскопія. Нашим методом забезпечено безпосередню реєстрацію оптичного відгуку досліджуваної структури, тоді як згадані методи дозволяють визначити лише її морфологічну будову без встановлення оптичних характеристик.

1. A.A. Novikov, I.A. Khramtsovsky, V.Yu. Ivanov, I.S. Fedorov, A. Turkboev. Ellipsometry of inhomogeneous surface layers of anisotropic optical elements. *Izv. Vyssh. Uchebn. Zaved. Pribor.* **52**, 62 (2006) (in Russian).

2. A.A. Novikov, V.T. Prokopenko. Analysis of accurate and approximate methods for solving the reverse problem of ellipsometry for inhomogeneous surface layers. *Sci. Techn. J. Inf. Technol. Mech. Opt.* **6**, 87 (2006) (in Russian).
3. O.D. Volpian. Optical coatings with longitudinal gradient of refraction index and vacuum-plasma technology of their obtaining. *Prikl. Fiz.* No. 6, 47 (2012) (in Russian).
4. A.N. Gorlyak, I.A. Khramtsovsky, V.M. Solonukha. Ellipsometry method application in optics of inhomogeneous media. *Sci. Techn. J. Inf. Technol. Mech. Opt.* **15**, 378 (2015) (in Russian).
5. A.N. Gorlyak, O.S. Dron, Yu.V. Lisitsyn, A.I. Semenenko. Investigation of disturbed layers of polished optical surface and stresses in adhesive and glueless joints of optical elements by the method of ellipsometry. *Sci. Techn. J. Inf. Technol. Mech. Opt.* **4**, 30 (2004) (in Russian).
6. A.N. Gorlyak, A.G. Novak, V.M. Solonukha, I.A. Khramtsovsky. Optical characteristics definition of optical technology surface elements for their optical connections. *Sci. Techn. J. Inf. Technol. Mech. Opt.* **13**, 62 (2013) (in Russian).
7. A.A. Novikov, V.T. Prokopenko, I.A. Khramtsovsky. Optical properties of the rough surface of optoelectronics elements. *Sci. Techn. J. Inf. Technol. Mech. Opt.* **15**, 73 (2004) (in Russian).
8. A.N. Gorlyak, V.M. Solonukha, I.A. Khramtsovsky. Sectioning method application at ellipsometry of inhomogeneous reflection systems. *Sci. Techn. J. Inf. Technol. Mech. Opt.* **14**, 24 (2014) (in Russian).
9. D.E. Aspnes. Precision bounds to ellipsometer systems. *Appl. Opt.* **14**, 1131 (1975).
10. L.V. Poperenko, V.S. Stashchuk. *Fundamentals of Physics of Optotechnique Materials* (Kyiv Univ., 2011) (in Ukrainian).
11. A.L. Yampolskiy, O.V. Makarenko, L.V. Poperenko, V.O. Lysiuk. Ellipsometry of hybrid noble metal-dielectric nanostructures. *Semicond. Phys. Quant. Electr. Optoelectr.* **21**, 412 (2018).
12. G. Hass. *Physics of Thin Films: Advances in Research and Development* (Academic Press, 1963).
13. D.E. Aspnes, J.B. Theeten, F. Hottier. Investigation of effective-medium models of microscopic surface roughness by spectroscopic ellipsometry. *Phys. Rev. B* **20**, 3292 (1979).
14. L.A. Apresian, D.V. Vlasov, D.A. Zadorin, V.I. Krasovskii. On the model of an effective medium for particles with a complex structure. *Zh. Tekhn. Fiz.* **87**, 10 (2017) (in Russian).

15. L.V. Poperenko, Yu.D. Filatov. *Optical Surfaces Treatment Technology* (Kyiv University Paleographic Centre, 2004) (in Ukrainian).
16. M.E. Aleksandrov, T.M. Danilova, P.S. Belomutskaya, I.A. Khramtsovsky. Radiation loss determination on the optical elements by ellipsometry and impulse photometry methods. *Sci. Techn. J. Inf. Technol. Mech. Opt.* **11**, 9 (2011) (in Russian).

Одержано 04.04.19

*O. V. Makarenko, L. V. Poperenko,*

*O. I. Zavalistyi, A. L. Yampolskiy*

#### ELLIPSOMETRIC DIAGNOSTICS OF A TRANSIENT SURFACE LAYER IN OPTICAL GLASS

#### S u m m a r y

Optical properties of a transient layer with a broken structure that arises at the surface of optical glass at its treatment have been considered. Rather often, the surface of optical elements is considered to be perfect, although the actual inhomogeneous surface structure can have a significant effect for precision physical experiments or novel technological problems. Furthermore, the simulation of the surface layer structure and the corresponding optical characteristics, as well as the study of a possibility to determine those parameters from the results of optical researches, is also of theoretical interest, which is demonstrated in this work. Ellipsometric measurements of optical glass specimens with a broken surface layer are carried out. When modeling the angular dependences of the ellipsometric parameters  $\tan \psi$  and  $\cos \delta$ , the near-surface specimen region is considered as a stack of 500 thin layers, and the matrix method of light reflection in this structure with regard for the interference phenomenon is used in calculations. Five models are tested for the optical profile of a nonuniform layer, whose parameters are fitted to achieve the minimum of the target function describing the discrepancy between the calculated and measured data. It is found that the theoretical models describe the optical properties of the specimens more accurately, if they make allowance for the inhomogeneous surface layer. Nevertheless, the solution of the inverse ellipsometric problem turns out ambiguous, so that additional measurements are required for the final choice of a model that would be adequate to the actual morphological structure of the broken layer to be made. However, the key advantage of the applied method consists in that it allows a direct registration of the optical response of the system.