

УДК 535.012

Н. Н. Сендер

канд. физ.-мат. наук, доц., зав. каф. математического анализа,
дифференциальных уравнений и их приложений
Брестского государственного университета имени А. С. Пушкина
e-mail: sender@brsu.brest.by

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНОЕ ОПРЕДЕЛЕНИЕ ОПТИЧЕСКИХ ПОСТОЯННЫХ ПОГЛОЩАЮЩИХ КРИСТАЛЛОВ НА ОСНОВЕ МЕТОДА ИММЕРСИОННОЙ ЭЛЛИПСОМЕТРИИ

На основе метода иммерсионной эллипсометрии определены оптические постоянные поглощающих одноосных кристаллов и низкосимметричных кристаллов ромбической сингонии, рассчитаны оптические постоянные таких кристаллов, как сапфир, турмалин, ниобат лития легированный Fe, ниобат лития, соль сульфокислоты Tl_3AsS_4 и ортоферрита тербия $TbFeO_3$. Предлагаемый подход позволяет относительно просто вычислить оптические постоянные одноосных и ромбических поглощающих кристаллов. При этом удастся избежать трудностей, связанных с решением обратной задачи, поскольку оптические постоянные вычисляются без использования численных методов простым расчетом определяемых параметров по формулам.

Введение

В [1] предложен эллипсометрический метод измерения коэффициентов отражения изотропных сред с использованием иммерсионной жидкости при условии, что тангенциальная составляющая вектора рефракции остается неизменной при измерении с иммерсией и без нее. Для изотропных систем при этом удастся из эллипсометрических измерений ψ и Δ восстановить абсолютные значения элементов матрицы отражения, что упрощает решение обратной задачи, а также позволяет повысить точность определения оптических постоянных и толщин слоев.

В работе [2] теоретически показана возможность с помощью иммерсионных эллипсометрических измерений восстановить полную комплексную 2 на 2 матрицу отражения от анизотропной системы. Это существенно изменяет возможность решения обратной задачи эллипсометрии. Появляется перспектива ее надежного решения для поглощающих низкосимметричных кристаллов всех сингоний, а также слоистых анизотропных структур.

Иммерсионный метод, применяемый для определения показателей преломления прозрачных кристаллов, заключается в подборе жидкости с показателем преломления, близким к показателю преломления кристалла. Использование иммерсии в нашем подходе позволяет восстановить матрицу отражения, что принципиально отличает от известных применений иммерсии.

Экспериментальное определение оптических постоянных

При эллипсометрических исследованиях используют различные конструкции кювет [3]. Исходя из анализа ошибок, конструктивных особенностей эллипсометра (невозможность установить угол падения $< 45^\circ$) и необходимости выполнения условия

$$\xi = n_1 \sin \varphi_1 = n_2 \sin \varphi_2 = \text{const}, \quad (1)$$

удобно использовать кювету, в которую иммерсионная жидкость заливается плоскопараллельным слоем [3] (рисунк 1). Толщина слоя h подбирается такой, чтобы пучок 1, отраженный от поверхности иммерсии, не перекрывался с пучком 2, отраженным от образца S . Диаметр кюветы выбирается из условия, чтобы поверхность была плоской

и не искривлялась за счет мениска (по крайней мере та часть, от которой отражается пучок), но в то же время он не должен быть большим из-за появления ряби на поверхности жидкости (причины ее появления могут быть различными, любые механические воздействия на установку приводят к появлению ряби, поэтому необходимо принять меры, предотвращающие ее появление), которая вносит искажение в результаты измерений. Эту ситуацию можно сравнить с шероховатостью на поверхности. В этом случае необходим ее учет. Плоскопараллельность слоя иммерсии обеспечивает автоматически выполнение условия (1) при падении света на кристалл. При этом необходим учет изменения поляризации света на границе воздух-иммерсия. Связь между ψ и Δ при падении пучка света из иммерсии (рисунок 1), когда иммерсия является полубесконечной средой, с экспериментальными значениями ψ_0 и Δ_0 в случае плоскопараллельного слоя имеют вид

$$\begin{aligned} \operatorname{tg} \psi &= \cos^2(\varphi_1 - \varphi_2) \operatorname{tg} \psi_0, \\ \Delta &= \Delta_0. \end{aligned} \quad (2)$$

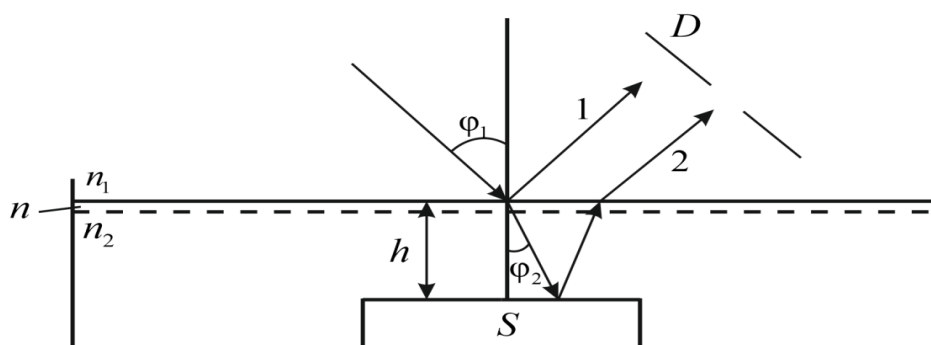


Рисунок 1. – Схема экспериментальных измерений при использовании иммерсионных жидкостей

Эта связь получена в случае резкой границы воздух-иммерсия. Если учесть переходный слой на поверхности жидкости, то полученные выражения отличаются от (2) лишь для Δ [4] (рисунок 1):

$$\Delta = \Delta_0 \pm 4\psi_m \frac{(n_2^2 - 1) \sin^2 \varphi_1}{\sqrt{n_2^2 + 1} (n_2^2 \cos \varphi_1 + \sqrt{n_2^2 - \sin^2 \varphi_1})}, \quad (3)$$

где

$$\psi_m = \left| \frac{\pi h (n_2^2 - n^2)(n^2 - 1)}{\lambda n^2 (n_2^2 - 1)} \sqrt{n_2^2 + 1} \right|,$$

ψ_m – минимальная эллиптичность при отражении от жидкости при угле Брюстера, n и n_2 – показатели преломления переходного слоя (переходный слой моделируется в виде плоскопараллельного изотропного слоя толщиной h) и иммерсионной жидкости. Переходный слой вносит малый вклад ($\approx 10^{-4}$), и им можно пренебречь и пользоваться формулами (2). Если на поверхности иммерсии появляется рябь, то в этом случае необходимо пользоваться формулой (3).

В качестве иммерсионной жидкости был взят глицерин. Выбор глицерина был продиктован следующими соображениями: во-первых, он вязок, что облегчает прово-

дить измерения при такой конструкции кюветы (рисунок 1), во-вторых, показатель преломления глицерина достаточно высок, а, как показывает анализ ошибок, они уменьшаются с увеличением показателя преломления иммерсионной жидкости. Показатель преломления глицерина определялся на рефрактометре на длину волны натрия, а затем с учетом дисперсии показателя преломления глицерина пересчитывался

на длину волны $\lambda = 6328 \text{ \AA}$ гелий-неонового лазера. Во время экспериментов было замечено, что при проведении контрольных измерений показателя преломления глицерина он изменялся. Изменение показателя преломления происходило в сторону уменьшения, что объясняется гигроскопичностью глицерина (с течением времени он набирает влагу). Поэтому перед экспериментом необходимо проводить измерения его показателя преломления, как указывалось выше, на рефрактометре с последующим перерасчетом

на длину $\lambda = 6328 \text{ \AA}$ или можно провести измерения непосредственно на эллипсометре и рассчитать показатель преломления иммерсионной жидкости по формулам, приведенным в [5], которые работают и в частном случае, когда среда изотропна.

Необходимая точность при определении оптических постоянных обеспечивается значением показателя преломления глицерина с точностью $\pm 0,001$. Была получена зависимость показателя преломления глицерина от температуры для интервала температур $10^\circ\text{C} - 35^\circ\text{C}$; изменения показателя преломления наблюдались в четвертом знаке после запятой, что обеспечивало необходимую точность при нахождении оптических постоянных.

Ориентировка кристаллов относительно плеч эллипсометра осуществлялась по методике, описанной в [6]. При измерении с иммерсией необходима юстировка эллипсометра, чтобы пучок 2 попадал на ФЭУ, а пучок 1 отражался диафрагмой D (рисунок 1). Она осуществлялась следующим образом. Если кристалл плоскопараллельный, то его кладут на дно кюветы и винтами столика добиваются, чтобы отраженный пучок попадал на ФЭУ. Затем заливается иммерсия. После этого винтами, определяющими уровень эллипсометра, добиваются, чтобы отраженные пучки 1 и 2 были в плоскости падения. Наконец, столик опускают вниз приблизительно на толщину слоя глицерина и винтами уровня эллипсометра регулируют, чтобы отраженный пучок 2 попал на ФЭУ. Если все же пучок не будет попадать на ФЭУ, то добиваются попадания на ФЭУ, повторив последние действия несколько раз. Этим автоматически обеспечивается плоскопараллельность слоя иммерсии, находящейся над кристаллом.

Определение ψ и Δ осуществлялось, как описано в [6], с учетом неидеальности компенсатора, его оптической активности, температурных колебаний параметров компенсатора и др. Рассчитанные на их основе оптические постоянные по формулам, приведенным в [7; 8] для одноосных и ромбических поглощающих кристаллов, указаны в таблицах 1 и 2. Полученные значения оптических постоянных хорошо согласуются с литературными, а также со значениями, полученными нами на основе приближенных соотношений и приведенными в таблицах 3 и 4.

Эллипсометрическим методом были определены оптические постоянные ромбических поглощающих кристаллов Tl_3AsS_4 , $TbFeO_3$.

Анализ ошибок иммерсионного метода для ромбических кристаллов в зависимости от угла падения, показателя преломления иммерсионной жидкости проводился следующим образом. Для различных углов падения решалась прямая и обратная задача с введенной в угол падения ошибкой. Затем находилась абсолютная или относительная ошибка от угла падения. Аналогично строилась зависимость от показателя преломления иммерсионной жидкости. Вид этих зависимостей аналогичен зависимостям, изображенным на рисунке 2, которые подтверждают известные из литературы факты о мини-

муме ошибок вблизи псевдобрюстеровского угла, а также уменьшении их при приближении значения показателя преломления иммерсионной жидкости к одному из показателей преломления ромбического кристалла.

Таблица 1. – Оптические постоянные одноосных кристаллов, вычисленные на основе иммерсионного метода

Кристалл	φ , град	θ , град	ψ_1 , град Δ_1 , град	ψ_2 , град Δ_2 , град	$N_0 = n_0 - i\chi_0$	$N_e = n_e - i\chi_e$
Сапфир	65	90	7,35 7,82	19,80 163,20	1,764 – i 0,025	1,758 – i 0,029
Ниобат лития лигированный Fe	60	0	3,25 1,34	26,75 176,75	2,266 – i 0,158	2,198 – i 0,152
Ниобат лития	45	0	2,70 160,62	27,00 178,71	2,286 – i 0,060	2,199 – i 0,050

Таблица 2. – Оптические постоянные поглощающих ромбических кристаллов Tl_3AsS_4 , $TbFeO_3$, рассчитанные на основе иммерсионного метода $N_i = \sqrt{\varepsilon_i} = n_i - i\chi_i$, $i = x, y, z$

Кристалл	φ , град	ψ_x	Δ_x	ψ_y	Δ_y	N_x	N_y	N_z
Соль сульфокислоты Tl_3AsS_4	45	35,78	179,57	35,74	179,62	2,828 – i 0,202	2,773 – i 0,201	2,824 – i 0,202
Ортоферрит тербия $TbFeO_3$	70	25,09	177,89	26,22	178,38	2,426 – i 0,088	2,452 – i 0,089	2,438 – i 0,108

Таблица 3. – Оптические постоянные одноосных кристаллов, вычисленные из эллипсометрических измерений на основе приближенных соотношений

Кристалл	φ , град	θ , град	ψ , град Δ , град	$\psi_\perp$, град $\Delta_\perp$, град	Первое приближение		Второе приближение	
					$N_0 =$ $= n_0 - i\chi_0$	$N_e =$ $= n_e - i\chi_e$	$N_0 =$ $= n_0 - i\chi_0$	$N_e =$ $= n_e - i\chi_e$
Рубин	45	90	21,12 179,55	21,38 179,90	1,759 – i 0,003	1,754 – i 0,004	1,759 – i 0,003	1,754 – i 0,004
Турмалин	45	90	18,49 178,78	20,04 177,62	1,644 – i 0,038	1,623 – i 0,033	1,650 – i 0,041	1,624 – i 0,032
Кальцит	45	44,63	16,63 180,0	19,44 180,0	1,637 – i 0,0	1,498 – i 0,0	1,651 – i 0,0	1,486 – i 0,0
Антрацит	45	75,20	23,95 165,70	28,87 164,31	2,073 – i 0,665	1,956 – i 0,655	2,084 – i 0,684	1,961 – i 0,534
Сапфир	65	90	7,21 8,97	7,35 7,82	1,762 – i 0,053	1,757 – i 0,047	1,763 – i 0,052	1,756 – i 0,047
Ниобат лития лигированный Cu	60	90	7,94 176,58	9,90 175,65	2,264 – i 0,046	2,197 – i 0,041	2,297 – i 0,053	2,205 – i 0,037
Кварц	45	90	18,33 177,15	17,52 177,75	1,541 – i 0,036	1,554 – i 0,039	1,543 – i 0,037	1,554 – i 0,040

Таблица 4. – Оптические постоянные поглощающих ромбических кристаллов Tl_3AsS_4 , $TbFeO_3$, вычисленные из эллипсометрических измерений на основе приближенных соотношений $N_i = \sqrt{\varepsilon_i} = n_i - i\chi_i$, $i = x, y, z$

Кристалл	φ , град	ψ_x	Δ_x	ψ_y	Δ_y	ψ_z	Δ_z	N_x	N_y	N_z
Соль сульфокислоты Tl_3AsS_4	65	9,41	166,76	9,49	166,87	8,73	165,08	2,828 -i 0,2	2,770 -i 0,20	2,822 -i 0,200
Ортоферрит тербия $TbFeO_3$	70	4,29	16,51	3,87	17,51	4,16	18,64	2,424 -i 0,09	2,453 -i 0,089	2,436 -i 0,100

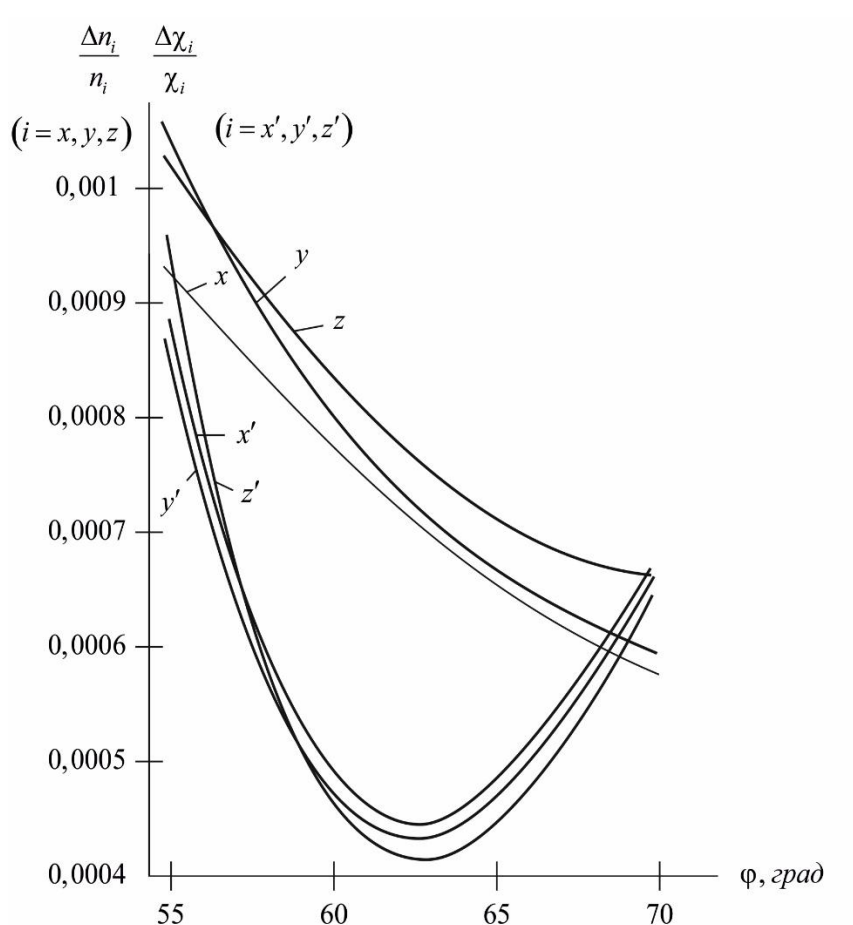


Рисунок 2. – Зависимость относительных ошибок $\frac{\Delta n}{n}$ и $\frac{\Delta \chi}{\chi}$ показателей преломления и коэффициентов поглощения ромбических кристаллов от угла падения φ

Заключение

На основе разработанных методов определения оптических постоянных поглощающих одноосных и ромбических кристаллов был составлен комплекс расчетных программ, по которым и производились расчеты.

Таким образом, предлагаемые подходы позволяют относительно просто вычислить оптические постоянные одноосных и ромбических поглощающих кристаллов по приближенным соотношениям и иммерсионным методом. При этом удается избежать трудностей, связанных с решением обратной задачи, поскольку оптические постоянные вычисляются без потери точности их определения по формулам подстановкой в них измеряемых эллипсометрических параметров.

СПИСОК ИСПОЛЬЗОВАННОЙ ЛИТЕРАТУРЫ

1. Шве́ц, В. А. О возможности определения комплексных коэффициентов отражения методом эллипсометрии / В. А. Шве́ц // Оптика и спектроскопия. – 1983. – Т. 55, № 3. – С. 558–560.
2. Филиппов, В. В. Определение 2×2 матрицы отражения с помощью иммерсионных эллипсометрических измерений / В. В. Филиппов, М. М. Карпук // Оптика и спектроскопия. – 1987. – Т. 63, № 6. – С. 1392–1394.
3. Пшеницын, В. И. Эллипсометрия в физико-химических исследованиях / В. И. Пшеницын, М. И. Абаев, Н. Ю. Лызлов. – Л. : Химия, 1986. – 152 с.
4. Мардежов, А. С. Учет пленки на границе воздух жидкость при проведении иммерсионных измерений через плоскопараллельный слой жидкости / А. С. Мардежов, К. К. Свитаев, В. А. Шве́ц // Укр. физ. журн. – 1986. – Т. 31, № 2. – С. 48–50.
5. Сендер, Н. Н. Определение оптических постоянных анизотропных поглощающих кристаллов на основе разложения в ряд коэффициентов отражения / Н. Н. Сендер // Весн. Брэсц. ун-та. Сер. 4, Фізіка. Матэматыка. – 2016. – № 1. – С. 38–45.
6. Сендер, Н. Н. Экспериментальное определение оптических постоянных поглощающих кристаллов на основе приближенных соотношений / Н. Н. Сендер // Весн. Брэсц. ун-та. Сер. 4, Фізіка. Матэматыка. – 2018. – № 1. – С. 48–58.
7. Сендер, Н. Н. Иммерсионный метод определения оптических постоянных анизотропных поглощающих кристаллов / Н. Н. Сендер // Весн. Брэсц. ун-та. Сер. 4, Фізіка. Матэматыка. – 2015. – № 2. – С. 40–48.
8. Filippov, V. V. Optical constants of TbFeO_3 measured by the immersion ellipsometry method at wavelength $0,63 \mu\text{m}$ / V. V. Filippov, I. D. Lomako, N. N. Sender // J. Phys. D. Appl. Phys. – 1994. – № 27. – P. 1964–1967.

Рукапіс паступіў у рэдакцыю 31.03.2020

Sender N. N. Experimental Determination of Optical Constant Absorbing Crystals Based on the Method of Immersion Ellipsometry

Based on the method of immersion ellipsometry, the optical constants absorption crystals of one-axis crystals and low-symmetric crystals of rhombic singonia, the optical constants of such crystals as sapphire, tourmaline, lithium niobate alloyed Fe, lithium niobate, sulfoxide salt Tl_3AsS_4 and terbium orthoferrite TbFeO_3 . The proposed approach makes it relatively easy to calculate the optical constants of single-axial and rhombic absorption crystals. This avoids the difficulties associated with solving the inverse problem, since the optical constants are calculated without the use of numerical methods by simply calculating the determined parameters according to formulae.