

## ***Inhalt***

*1. Auszug aus der Diplomarbeit von B. Hillebrands, RWTH Aachen, 1993/94.*

*2. Reproduzierte Abbildungen von  $R_p/R_s$  für verschiedene Einfallswinkel*

### III.2 Die $R_p/R_s$ -Meßmethode zur Bestimmung optischer Konstanten

#### III.2.1 Übersicht über direkte Methoden zur Bestimmung optischer Konstanten

Die bekanntesten Methoden zur Bestimmung optischer Konstanten sind ellipsometrische Methoden. Sie beruhen, wie auch die im folgenden beschriebenen Methoden, auf den verschiedenen Reflektivitäten von parallel ( $R_p$ ) und senkrecht ( $R_s$ ) zur Einfallsebene polarisiertem Licht bei nicht-senkrechter Inzidenz. Es werden bei den ellipsometrischen Verfahren die Hauptachsen der Polarisationsellipsen des reflektierten Lichtes ausgemessen. Bei Metallen, d.h. bei großen Werten von  $\eta$  und/oder  $k$ , versagen jedoch diese Verfahren; das Minimum von  $R_s$  im Brewsterwinkel wird sehr flach, die Polarisationsellipse wird fast kreisförmig und damit der Fehler der zu bestimmenden Größen  $n$  und  $k$  unvermeidbar groß.

Mittels der Fresnelschen Formeln kann ein analytischer Zusammenhang zwischen Reflektionsmessungen bei nicht senkrechter Inzidenz und den optischen Konstanten  $n$  und  $k$  gefunden werden. Für jedes Paar optischer Konstanten müssen dabei zwei Reflektionsmessungen durchgeführt werden. Es können die Reflektivitäten  $R_p$ ,  $R_s$ , das Verhältnis  $R_p/R_s$  oder  $R=(R_p+R_s)/2$  (= Reflektivität des unpolarisierten Lichtes) bei zwei verschiedenen Winkeln oder am Brewsterwinkel gemessen werden, wodurch sich eine Vielzahl möglicher Verfahren ergibt. In (/III.3, III.4/) sind die Verfahren vorgestellt und in Bezug auf ihre Anwendbarkeit untersucht worden. Es zeigt sich, daß nur zwei Verfahren eine gute Fehlerstabilität - d. h. kleine Änderungen der

Eingabeparameter bewirken nur kleine Änderungen der Ergebnisse - für einen großen Bereich der optischen Konstanten besitzen. Diese beiden Verfahren sind Messung von  $R_p/R_s$  bei zwei verschiedenen Winkeln und Messung von  $R_p/R_s$  am Brewsterwinkel. Das zweite Verfahren erfordert jedoch die genaue Messung des Brewsterwinkels und ist bei großen  $n$ - und  $k$ -Werten (Fig. 16) mit ausreichender Genauigkeit meßtechnisch nur sehr schwer durchzuführen. Es zeigt sich daher, daß bei Metallen, wo ellipsometrische Verfahren zur Bestimmung der optischen Konstanten mit einem sehr großen Fehler behaftet sind, die erste Methode - die Messung des Verhältnisses  $R_p/R_s$  der Reflektivitäten von parallel und senkrecht zur Einfallsebene polarisiertem Licht unter zwei verschiedenen Winkeln - die genauesten Ergebnisse liefert. Sie wurde von D. G. Avery entwickelt (/III,5/), Für diese Arbeit wurde eine analytische Rechnung von H. A. Meier und G. Güntherodt (/III,6/) zugrundegelegt, die im folgenden kurz skizziert wird:

### III,2,2 Die $R_p/R_s$ -Methode

Mit dem komplexen Brechungsindex  $N = n + ik$  sowie dem Einfallswinkel  $\theta_e$  und dem komplexen Brechungswinkel  $\theta_t$  ergibt sich aus den Fresnelschen Gleichungen:

$$R_p = \left| \frac{\tan (\theta_e - \theta_t)}{\tan (\theta_e + \theta_t)} \right|^2 \quad (37)$$

$$R_s = \left| \frac{\sin (\theta_e - \theta_t)}{\sin (\theta_e + \theta_t)} \right|^2 \quad (38)$$

Mit dem komplexen Brechungsgesetz

$$(n + ik) \sin \theta_t = \theta_e \quad (39)$$

folgt daraus mit den Abkürzungen

$$\begin{aligned}
 Q &= Q_e \\
 p &= n^2 + k^2 \\
 q &= n^2 - k^2 \\
 I &= q - \sin^2 Q \\
 m^2 &= I^2 + 4n^2 k^2 = p^2 - 2q \sin^2 Q + \sin^4 Q
 \end{aligned}
 \tag{40}$$

$$\text{Rp/Rs} = \frac{\mu + \sin^2 \theta \tan^2 \theta - \sin \theta \tan \theta \sqrt{2(\lambda + \mu)}}{\mu + \sin^2 \theta \tan^2 \theta + \sin \theta \tan \theta \sqrt{2(\lambda + \mu)}}
 \tag{41}$$

Neben dem Einfallswinkel  $\theta$  ist Rp/Rs in (41) nur noch von den Hilfsgrößen  $p$  und  $q$  abhängig. Mißt man Rp/Rs bei zwei verschiedenen Winkeln  $\theta_1$  und  $\theta_2$ , so erhält man zwei Gleichungen mit den beiden Unbekannten  $p$  und  $q$ , die sich in ein Polynom vierten Grades in  $p^2$  transformieren lassen und dessen Nullstellen Lösungen für  $p$  sind.  $q$  erhält man durch Einsetzen der Lösungen von  $p$  in (41). Aus  $p$  und  $q$  erhält man dann mittels (4) die gesuchten Werte für den Brechungsindex  $n$  und den Absorptionskoeffizienten  $k$ . Das Verfahren liefert mehrere Lösungen für  $p$  und  $q$  und damit  $n$  und  $k$ , aus denen die einzig physikalisch sinnvolle Lösung dadurch bestimmt werden kann, daß man für jede Lösung von  $n$  und  $k$  deren Werte in (5) einsetzt und die so erhaltenen Werte für Rp/Rs mit den Meßwerten für beide Winkel  $\theta_1$  und  $\theta_2$  vergleicht. Nur die eine physikalisch richtige Lösung liefert Übereinstimmung bei beiden Winkeln.

Eine vollständige analytische Rechnung ist in (/III.6/) durchgeführt. Im Computer-Unterprogramm FRESNL (siehe VI.3) ist der Algorithmus numerisch realisiert worden.

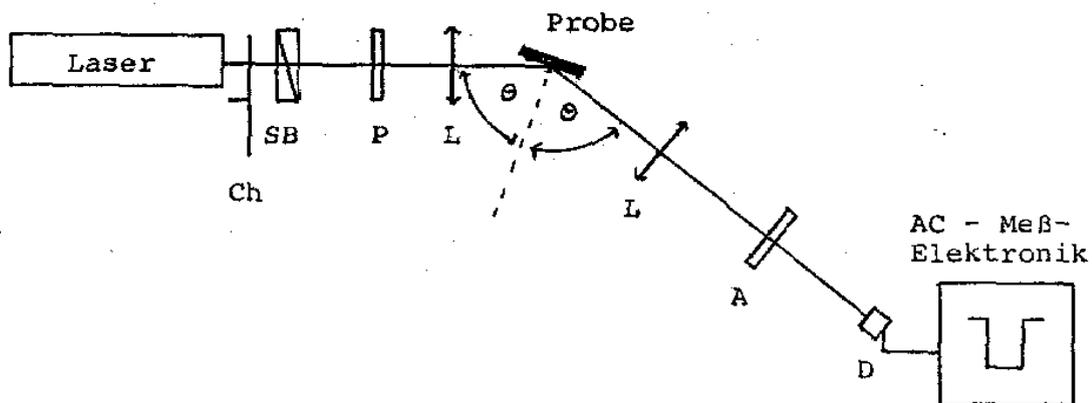
### III.2.3 Fehlerabschätzung

Die Stabilität des Rechenverfahrens selber ist sehr groß. Vergleicht man die Meßwerte  $R_p/R_s$  mit Werten, die man durch Einsetzen der durch das Rechenprogramm erhaltenen Werte für  $n$  und  $k$  in (41) erhält, so ist die Abweichung kleiner als  $10^{-4}$ . Fehler in der Bestimmung von  $n$  und  $k$  werden daher im wesentlichen durch Meßfehler von  $R_p/R_s$  und von  $\theta$  verursacht. In Fig. 16 ist  $R_p/R_s$  in Abhängigkeit von  $\theta$  für verschiedene Werte von  $n$  und  $k$  aufgetragen. Um den Fehler der Methode möglichst gering zu halten, müssen die beiden Winkel  $\theta_1$  und  $\theta_2$  so gewählt werden, daß deren Differenz möglichst groß und gleichzeitig die Variation von  $R_p/R_s$  bei sich änderndem  $n$  und  $k$  ebenfalls möglichst groß werden. Dies ist recht gut erfüllt, falls  $\theta_1$  etwas kleiner als der Brewsterwinkel und  $\theta_2$  so groß wie meßtechnisch möglich wird. Man beachte jedoch, daß  $\theta_2$  infolge von Oberflächenrauigkeiten der Probe über einen kleinen Bereich variieren kann, innerhalb dessen  $R_p/R_s$  sich nicht allzusehr ändern sollte, um den Fehler klein zu halten. Es ist so eine obere Grenze für  $\theta_2$  gesetzt. In Fig. 17 sind  $n$  und  $k$  in Funktion von  $R_p/R_s(\theta_1)$  und  $R_p/R_s(\theta_2)$  aufgetragen. Sie erlauben, Aussagen über die Fehlerempfindlichkeit der Meßmethode zu machen: Der Flächeninhalt eines durch je zwei benachbarte Linien konstanten Brechungsindex  $n$  und konstanten Absorptionskoeffizienten  $k$  eingeschlossenen Vierecks ist ein Maß für die Änderungen von  $n$  und  $k$  als Folge von Fehlern bei der Bestimmung von  $R_p/R_s$ . Man sieht, daß diese Fehlerempfindlichkeit für "realistisch zu erwartende" Werte von  $n$  und  $k$  gering ist. Wählt man für  $\theta_2$  statt  $75^\circ$   $80^\circ$ , so wird die Fehlerempfindlichkeit noch wesentlich geringer, jedoch ändern sich  $n$  und  $k$  jetzt sehr stark, falls  $\theta_2$  nur geringfügig variiert. Dies erläutert

Fig. 19 mit  $\theta_1=60^\circ$  und  $\theta_2=80^\circ$ . Die ausreichend geringe Fehlerempfindlichkeit auf  $R_p/R_s$  in Abhängigkeit des Winkels  $\theta_2$  zeigt ein Vergleich zwischen Fig. 17 und Fig. 18, welche für  $\theta_2=75^\circ$  (Fig. 17) bzw.  $\theta_2=76^\circ$  (Fig. 18) gezeichnet sind: Ein Winkelfehler von  $1^\circ$  hat einen Fehler von 0,2 in  $n$  und  $k$  zur Folge.

### III.2.4 Experimenteller Aufbau und Meßablauf

Fig. 20 zeigt den schematischen Aufbau der Meßapparatur.



Ch: Chopper  
 SB: Soleil-Babinet  
 P : Polarisationsfolie  
 L : Sammellinse  
 A : Analysatorfolie  
 D : Photodiode

Fig. 20

Auf einige Besonderheiten des Aufbaus sei hingewiesen: Da der Laser selber schon polarisiertes Licht aussendet, wird dies vor dem Polarisator mit einem Soleil-Babinet-Rotator zirkular polarisiert, um gleiche Intensitäten für das einfallende Licht beider linearer Polarisationsrichtungen zu gewährleisten. Um Nullpunktschwankungen der Meßelektronik zu unterdrücken, erfolgt die Lichtintensitätsmessung im AC-Betrieb, wobei der Lichtstrahl durch einen Chopper moduliert wurde.

Für die untersuchten Proben wurden die Winkel  $\theta_1=60^\circ$  und  $\theta_2=75^\circ$  gewählt. Es wurden die folgenden Ergebnisse erzielt:

Substanz	Energie	n	k
CePd <sub>3</sub>	2,54	2.2	2.7
YPd <sub>3</sub>	2.54	1.8	2.3
PrPd <sub>3</sub>	2.60	2.0	2.3

Der Fehler beträgt für n und k +/- 0.3 .

Tabelle 1

	CePd <sub>3</sub>	YPd <sub>3</sub>	PrPd <sub>3</sub>
$\sigma_0$ ( $\Omega^{-1} \text{cm}^{-1}$ )	8100	150000	55000
$\tau_0$ (sec)	$8.5 \cdot 10^{-15}$	$3 \cdot 10^{-13}$	$6 \cdot 10^{-14}$
$1/\tau_0$ (meV)	77	2.2	11
$\omega_p = \sqrt{\sigma_0/\tau_0}$ (eV)	2.2	1.6	2.1

## Meßverfahren

Abb. F 2

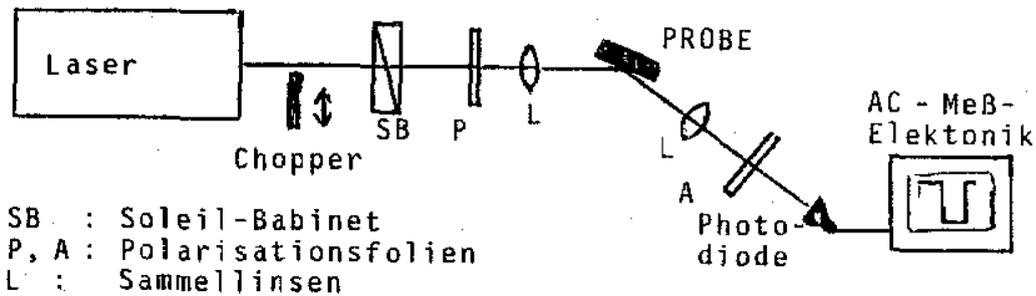


Abb. F 2 zeigt schematisch den für die  $R_p/R_s$ -Messungen aufgebauten Strahlengang.

Auf folgende Besonderheiten sei hingewiesen:

- (1) Die Lichtmessung erfolgt im AC-Betrieb, um den Einfluß von Nullpunktschwankungen der Meßelektronik zu unterdrücken.
- (2) Das Licht wird vor dem Auftreffen auf die Polarisatorfolie zirkular polarisiert, um gleiche Intensitäten für das einfallende Licht beider Polarisationsrichtungen zu gewährleisten.
- (3) Das einfallende Licht wird auf die Probe fokussiert, um definierte Winkelverhältnisse für einfallendes und reflektiertes Licht zu erhalten. Auf den oftmals schlechten Probenoberflächen sind teilweise nur ebene Flächen mit Durchmessern von kleiner als 1/10 mm vorhanden.
- (4) Der Strahlengang bis zur Probe ist im Prinzip identisch mit dem für die Brillouinstreuung. Somit kann die  $R_p/R_s$ -Messung parallel zur Brillouinstreuung durchgeführt werden (einheitliche Probengeometrie!).

## Literaturangaben

/III.1/ J. Jäckle, "Einführung in die Transporttheorie", Vieweg 1978.

/III.2/ H. Schneider und D. Wohlleben, Z. Phys. B **44**, 193 (1981).

/III.3/ W. R. Hunter, Opt. Soc. Amer. **62**, 599 (1972).

/III.4/ S. P. F. Humphreys-Owen, Proc. Phys. Soc. **77**, 949 (1960).

/III.5/ D. G. Avery, Proc. Phys. Soc. **65 B**, 425 (1952).

/III.6/ H. A. Meier, Diplomarbeit, ETH Zürich, unveröffentlicht.

Die folgenden Abbildungen wurden auf Basis von Gl. (41) ermittelt. Sie entsprechen den Abbildungen 17, 18, und 19, die in der Diplomarbeit von B. Hillebrands erwähnt und diskutiert wurden.

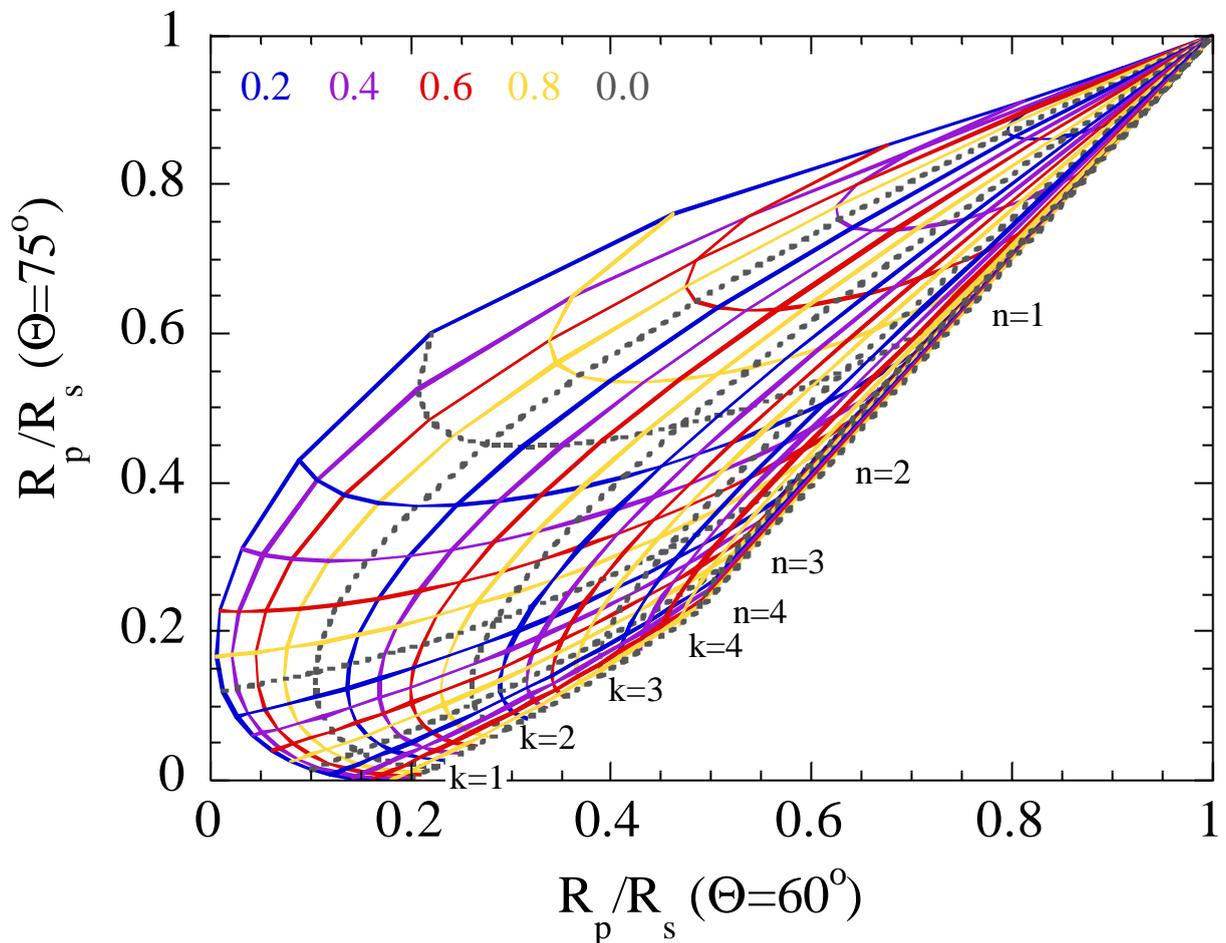


Abb. 1: Vergleich der Reflexionsverhältnisse für Einfallswinkel von 60 und 75 Grad für den Bereich  $n,k=0.2-0.4-0.6\dots 4.0$ . Die ganzzahligen Werte von  $n$  und  $k$  sind durch dicke graue Punktlinien gekennzeichnet. Die Zwischenwerte sind gemäß Legende farbcodiert.

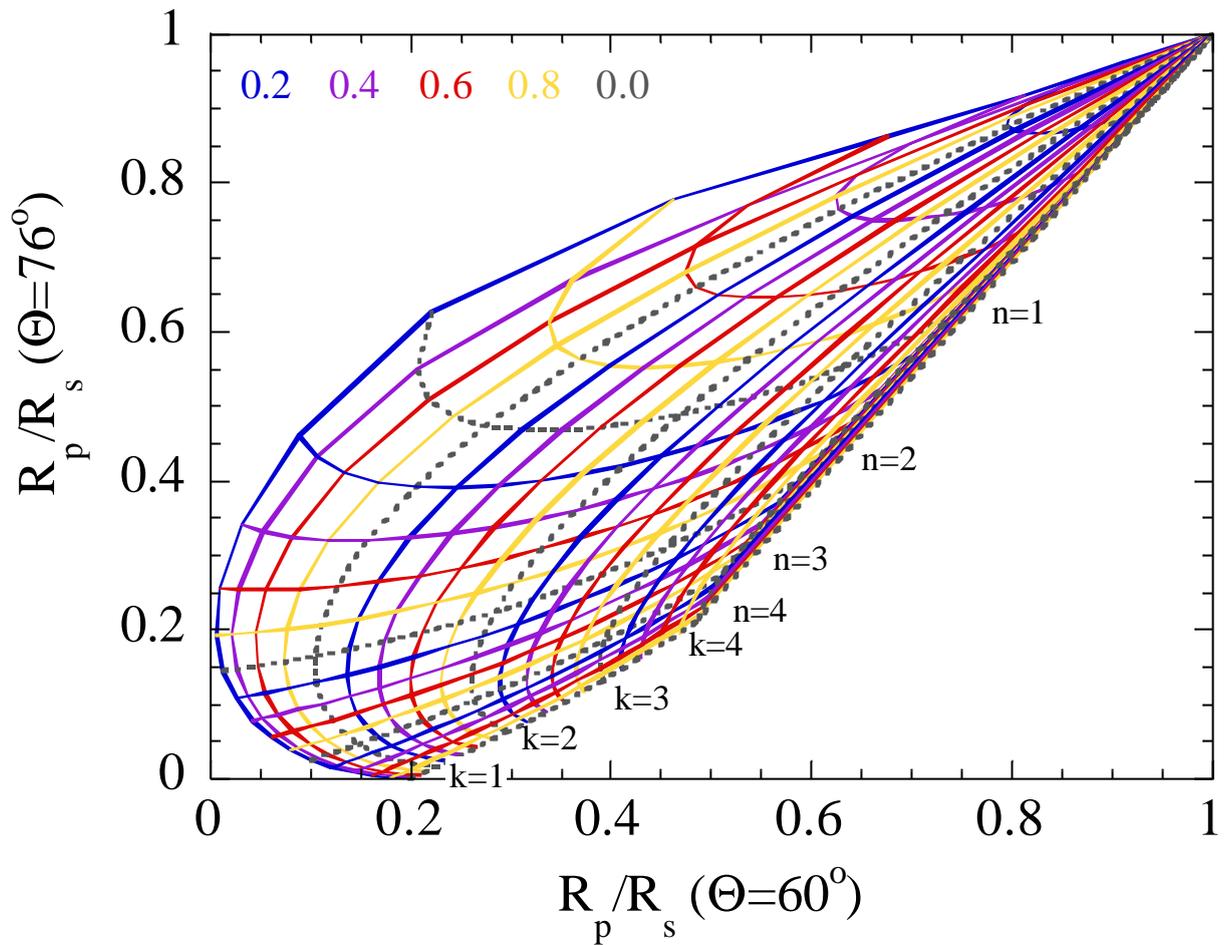


Abb. 2: Vergleich der Reflexionsverhältnisse für Einfallswinkel von 60 und 76 Grad für den Bereich  $n,k=0.2-0.4-0.6...4.0$ . Die ganzzahligen Werte von  $n$  und  $k$  sind durch dicke graue Punktlinien gekennzeichnet. Die Zwischenwerte sind gemäß Legende farbcodiert.

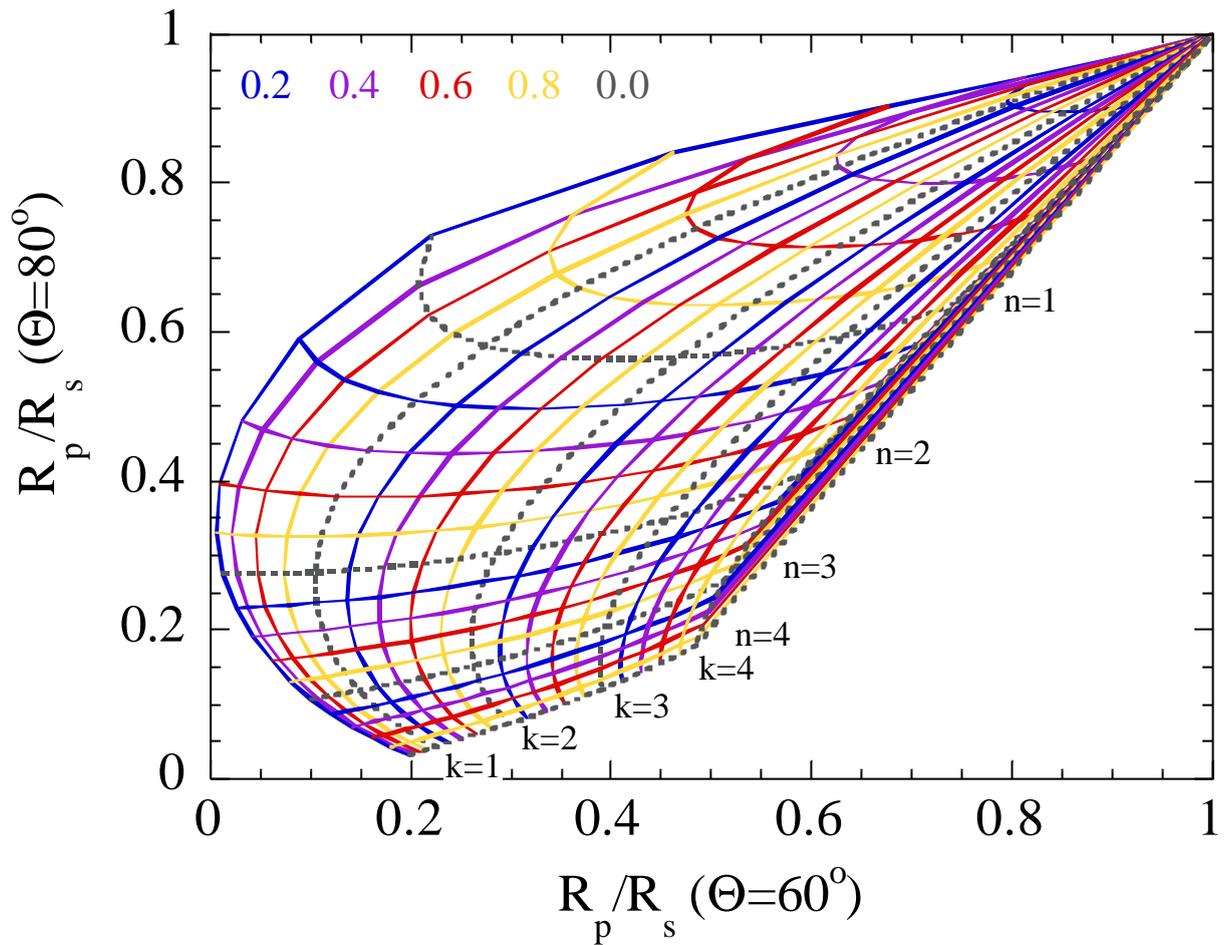


Abb. 3: Vergleich der Reflexionsverhältnisse für Einfallswinkel von 60 und 80 Grad für den Bereich  $n,k=0.2-0.4-0.6...4.0$ . Die ganzzahligen Werte von  $n$  und  $k$  sind durch dicke graue Punktlinien gekennzeichnet. Die Zwischenwerte sind gemäß Legende farbcodiert.

Frage: Warum bieten sich gerade die angegebenen Winkelbereiche für eine genaue Analyse des komplexen Brechungsindex an?