エリプソメトリ法

1 はじめに

エリプソメトリは,元来,物質の表面における光反射 時の偏光状態変化を計測する方法である.この偏光状態 の変化は,反射・屈折する界面(及びその近傍)の媒質の 光学的性質(屈折率や膜厚等)によって決まる.従って, 計測された偏光状態の変化から,界面近傍の情報として, 屈折率や膜厚を知ることができる.また,媒質の屈折率 (或いは誘電率)を決めている密度,化学結合,導電性に 関する情報も間接的に知ることができる.

本稿では,まず,光の透過と反射による薄膜の評価に ついて基本的事項を概説する[1-3].続いて,エリプソ メトリーによる薄膜の評価法について概説する.実際に エリプソメトリを研究に利用しようとする方や,研究対 象にしようとする方は,更に成書を参照されたい[4-7]. また,学術誌上の Review 記事も多数あるので参照され たい[8-15].

2 透過率と反射率のスペクトル

エリプソメトリの説明の前に,基板上に薄膜を有する 試料の透過率・反射率スペクトルの計測によって,どの ような情報が入手できるかを述べる.

図1は, 膜厚 500 nm のシリコン薄膜(媒質1)がガラ ス基板(媒質2)上に形成されている試料の透過率と反射 率を計算によって求めたものである.シリコンの屈折率 データとしては, c-Siのデータを用いた.

吸収や散乱が無く,透過率測定と反射率測定の入射角 が同じであれば,透過率と反射率の間には,

$$T + R = 1 \tag{1}$$

なる関係が成り立つ.

同図中の破線は膜内の多重反射が無い,という仮想的 な状態について計算したものであり,多重反射による極



図 1: ガラス基板 (1 mm) 上のシリコン薄膜 (500 nm) の透過 率 T,反射率 R,および T+Rのスペクトルの計算結果.破 線は,膜内の多重反射が無いものとして計算した結果. 大・極小のちょうど中間値となっている.また,膜によ る吸収が顕著になる500 nm以下の波長域では,透過率 に対する多重反射の影響を無視でき,純粋に膜の吸収の みを反映した透過率になっている.このような波長域に おいてのみ,以下の理論式を用いて透過率から吸収係数 を算出することができる,

$$\alpha = -\frac{1}{d} \ln\left(\frac{T}{1-R}\right). \tag{2}$$

但し,吸収係数を求めるためには膜厚 d の情報が必要で ある.その手法のひとつとして,後述の干渉ピークの解 析法がある.

波長 1000 nm 以上に現れている干渉ピークは, 膜表面 と膜・基板界面の間で生じる多重反射によって生じてい る.従って,このピークの間隔から膜厚の情報を抽出す ることが可能となる.基板上の薄膜の透過率は,Tomlin によって詳しく述べられている[1].ここでは,比較的 簡単な,膜と基板が透明な場合について述べる.

薄膜と基板が透明であると仮定すると, n₂ < n₁(例えば, 媒質1がシリコンで媒質2がガラス)の場合に,

$$2n_1d = (m+1) \lambda_{\text{Tmax}}, \ 2n_1d = (m+\frac{1}{2}) \lambda_{\text{Tmin}}$$
 (3)

を満たす波長 λ_{Tmax} および λ_{Tmin} において透過率が極大および極小となる.

透過率の極大・極小値は基板と膜の屈折率だけを用い て,次式のように表すことができる.

$$T_{\max} = \frac{4n_2}{(1+n_2)^2}, \ \ T_{\min} = \frac{4n_1^2n_2}{(n_1^2+n_2)^2}$$
 (4)

 T_{max} から基板の屈折率 n_2 を知ることができ,この n_2 と T_{\min} から膜の屈折率を知ることができる.なお,T+R = 1を用いて,反射率スペクトルによる膜厚の評価も可能 である.

2.1 透過測定の注意事項

図 2(a) のようなセットアップで I₀ と I を計測し,

$$T = \frac{I}{I_0} \tag{5}$$

が薄膜のみの透過率であるというのは,一般には正しく 無い.例えば,基板の反射率がゼロでないときに適用す ると,T>1というおかしなことになる場合がある.

式(5)の割り算に物理的意味があるのは,本来は,図 2(b)のように,光路中の試料の有無の効果だけを抽出す る場合である.また,その割り算によって得られる結果 は,試料全体の透過率であり,薄膜だけの透過率ではない.そのスペクトルの解析も,基板の存在を考慮した解 析を行うことになる.



図 2: 薄膜の相対透過率 (a) と試料全体の絶対透過率 (b), Al に 対する相対反射率 (c) と絶対反射率 (d), およびエリプソメト リの測定セットアップ例.



図 3: Al, Al₂O₃(5.3 nm)/Al, および Au の反射率スペクトル. 5.3 nm 程度の Al₂O₃ による被覆では, Al の反射率が大きく かわることがない.また,長波長領域では, Au の反射率の方 が波長依存性が小さい.

2.2 反射測定の注意事項

反射率測定については,一般には,図2(c)のようなAl に対する相対反射率を測定することが多い.これは,図 3に示すように,UV領域におけるAlの反射率が高く, 波長依存性があまり無く,5.3 nm程度と言われる酸化 膜(Al₂O₃)の影響があまり無いからである(Auは近赤外 や赤外域で活躍している).

先述の屈折率や膜厚を計算するときに,このような相対的な反射率を使うことはできない.正しくは,図2(d) に示す絶対反射率計測をしなければならない.この測定 オプションが無い場合には,せめて,サンプルの反射率 をリファレンス(例えばAI)の反射率の理論値による校 正が必要である.

また,原理的に入射角を 0°にすることはできないため,多くの分光光度計では,入射光と反射光が別の光路を進むことのできる最低の角度で反射させていることに注意すること.装置に依存するが,5°や8°に設定されている場合が多い.

3 エリプソメトリ

これまでの節で,図 2(a)~(d) に示した透過・反射測 定によって,基板上の薄膜の膜厚や屈折率が求められる ことを示した.一方,エリプソメトリでは,図 2(e) に示 した反射測定をを行うことによって同様の情報を得る. 通常の反射率測定では,測定物理量が反射に伴う光強 度の変化量,というひとつの物理量であるため,その測 定から求められる薄膜のパラメータは最大でも一つであ る.これに対し,エリプソメトリでは,反射に伴う光の 振幅の変化と位相の変化,という二つの物理量を測定す るため,最大で二つのパラメータを求めることができる. また,後述のように,エリプソメトリは,同じ光のp 偏光とs偏光の複素振幅の比を解析対象とするため,光 源強度や光検出器感度の変動の影響が無い,リファレン

4 偏光状態と Jones ベクトル

スを必要としない,という特徴を有する.

ここでは,エリプソメトリで計測対象となる偏光状態 と,その表記法の一つである Jones ベクトルについて述 べる.

ある光波の任意の時刻における電界ベクトルが,図4 に示すように,その光波の進行方向に対して垂直な平面 (波面)内において,一定方向を向いているような光を偏 光という.自然光は,通常あらゆる方向の偏光が混合し た光である.偏光は,通常この自然光を二つの媒質の界 面で屈折させたり,反射させたりすることによって得る.

波面の進行方向を z 軸にとり, 波面の座標系として x, y 軸をとる.このとき,この波面内の電界ベクトルは, 次式で与えられる.

$$\begin{bmatrix} E_{x} \\ E_{y} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} |E_{x}| e^{i(\omega t + \delta_{x} - \gamma_{z}z)} \\ |E_{y}| e^{i(\omega t + \delta_{y} - \gamma_{z}z)} \end{bmatrix}$$
$$= e^{i(\omega t - \gamma_{z}z)} \begin{bmatrix} |E_{x}| e^{i\delta_{x}} \\ |E_{y}| e^{i\delta_{y}} \end{bmatrix}$$
(6)

ここで, ω は光の角周波数, γ_z はz軸方向への伝搬定数 である.偏光状態は $E_x \ge E_y$ の振幅比と位相差によっ て決定されるので,通常 $E_x \ge E_y$ の共通項は無視して 次のように表す.



図 4: 電磁波の偏光状態の模式図



このようなベクトルを Jones ベクトルという.

偏光状態は,主に, $E_x \ge E_y$ の相対的な振幅比 $|E_x|/|E_y| \ge cd相差 \delta_y - \delta_x$ によって決まる.そのため, 偏光状態を表すパラメータとして次式に示すような E_x $\ge E_y$ の比が用いられる.

$$\chi = \frac{E_y}{E_x} = \frac{|E_y|}{|E_x|} e^{i (\delta_y - \delta_x)}$$
(8)

表1に代表的な偏光状態の Jones ベクトルで表示を示す.同表中の図ではわからないが,位相差成分の±の違いは,振動や回転の向きの違いとなって現れる.

5 複素屈折率と複素誘電率

ここでは,エリプソメトリ(及び,透過率・反射率)の 計測結果の解析において,重要な膜の光学的パラメータ となる屈折率と誘電率の複素数版について述べる.

二つの透明媒質の界面における反射と屈折において 偏光状態の変化を支配する媒質の物性パラメータは屈折 率 n である.光の減衰が起こらない透明な媒質中におい て z 方向に進行する電磁波を表す表式の中では,この屈 折率は次式のように位相の項に現れる.

$$\boldsymbol{E} = \boldsymbol{E}_0 \, \mathrm{e}^{\mathrm{i}\omega t} \, \mathrm{e}^{-\mathrm{i}\frac{\omega}{c}nz} \tag{9}$$

すなわち, $e^{i\omega t}$ が,時間的な振動を表す項であるのに対し, $e^{-i\frac{\omega}{c}nz}$ は, z 方向への進行にともなう位相の変化を表す.透明な媒質しか扱わない場合の Snell の法則や Fresnel の法則等の理論式は,全てこの屈折率 n を用いて記述されている.



図 5:物質の誘電分散と分極率の関係.

一方,媒質が透明ではなく,光の伝搬にともなう減衰 (吸収)が伴う場合には,

$$\boldsymbol{E} = \boldsymbol{E}_0 e^{i\omega t} e^{-i\frac{\omega}{c}nz} e^{-\frac{\omega}{c}kz}$$
(10)

$$= E_0 e^{i\omega t} e^{-i\frac{\omega}{c}Nz}$$
(11)

$$N = n - \mathrm{i}k \tag{12}$$

となる.ここで, k は減衰係数と呼ばれ,吸収による振幅の減衰を表す.実数の屈折率 n とこの k を併せ持つ量 N を複素屈折率と呼ぶ.

複素屈折率 N は,減衰を考えない場合の式 (9) における屈折率 n に相当する量になっている.そのため,透明媒質の光学理論において, $n \rightarrow N$ の置き換えをして、全てを複素数として取り扱うことで,吸収を伴う媒質についても,透明媒質の場合と全く同じ Snell の式や Fresnel の式を利用できる,という特長を有する.

同様の平面波の式を,比誘電率 ϵ_r ・比透磁率 μ_r ・導 電率 σ を媒質物性パラメータとする Maxwell の方程式 から導くと,複素屈折率とこれらの物性パラメータの間 に,以下の関係があることがわかる(ここでは,媒質を 電荷密度ゼロの $\mu_r = 1$ 非磁性とした).

$$N^{2} = \epsilon_{\rm r} - i\frac{\sigma}{\omega\epsilon_{0}} = \epsilon_{1} - i\epsilon_{2} = \epsilon$$
(13)

これを複素誘電率と呼ぶ.すなわち,誘電率と屈折率は,物質の電磁波に対する応答性という意味では,等価なパラメータである.

物質の誘電率は電界によって誘起される分極によって 決まり,加える電界の周波数に対して図5のような分散 特性を示す¹. GHz 帯域における物質の誘電率は,原子 固有の電子分極と化学結合状態に依存するイオン分極だ けで支配されるが,MHz 帯域では同じく化学結合状態 に依存する配向分極の成分も加わる[16].更に周波数の 高い光の領域では, ϵ_r に相当する電子分極のみが寄与す ることになる.

エリプソメトリで用いる電磁波の波長帯域は,通常 は,紫外・可視光の領域であるが,この図からわかるよ うに,各種分極に起因する共鳴分散等が生じる波長帯 域を用いることによって,電子分極以外の化学結合等の 情報に関しても得ることができることがわかる.実際 に,赤外エリプソメトリー[17-21]やTHzエリプソメ トリー[22,23]が提案されている.

1電荷が運動することによる σ の変化が起源.

6 複素反射率比とΨ,Δ

偏光が界面で反射すると偏光状態が変化する.その変 化分は p 偏光 (parallel; 平行) と s 偏光 (senkrecht; 垂直) の振幅「比」と位相「差」に与える影響のみであり,複 素反射率比 ρ で表される.ここで「平行」と「垂直」は, 図 6 に示すように「入射面」に対する関係である.

$$\rho = \frac{r_{\rm p}}{r_{\rm s}} = \frac{|r_{\rm p}| \ \mathrm{e}^{\mathrm{i}\delta_{\rm p}}}{|r_{\rm s}| \ \mathrm{e}^{\mathrm{i}\delta_{\rm s}}} = \tan \Psi \ \mathrm{e}^{\mathrm{i}\Delta}, \tag{14}$$

$$\tan \Psi = \frac{|r_{\rm p}|}{|r_{\rm s}|}, \quad \Delta = \delta_{\rm p} - \delta_{\rm s}, \tag{15}$$

$$\chi_{(\text{out})} = \rho \chi_{(\text{in})}.$$
 (16)

偏光が複素反射率比 ρ の界面で反射すると, p 偏光とs 偏光の振幅比が tan Ψ 倍変化し, 位相差は Δ だけ変化 する.エリプソメトリによって得られる情報は, あくま でもこの tan Ψ と Δ (偏光解析パラメータという)であり, それ以上の情報は媒質をどうモデル化するかに依存する. なお, ρ は p 偏光と s 偏光成分の反射率の位相成分も含 めた「比」であるため, 先述の通り, エリプソメトリは 観測時の光強度に左右されない, という利点がある.

7 Ψと∆の計測

偏光解析装置は,図7に示すように,一般に,光源 (L),偏光子(P),補償子(C),サンプル(S),検光子(A), 検出器(D)より構成され,消光型と測光型の2種類が ある.

消光型は,反射光が直線偏光となるように P や C を 調節し,検出光強度がゼロになるように A を調節する と,PとAの角度によって $\Psi \ge \Delta$ が計算できるという もので [24–26],正確度は高いが測定に時間がかかるた め,その場診断等には利用されていない.但し,後述の トラジェクトリ解析であれば,測定毎の Ψ, Δ がほぼ同 じ値を示すため,P,C,Aの角度を逐次制御した消光型 で高速測定を実現可能と考えられる.

測光型は,偏光素子である P, C, A に一定周波数の変 調を加えた際に,検出器で検出される光の強度がどのよ



図 6: 偏光解析における表面での反射.



図 7: 測光型偏光解析装置の模式図

表 2: 代表的な偏光素子の各種表記法	
偏光素子	Jones 行列
偏光子または検光子 <i>P</i> or <i>A</i> _{(x,y) (t,e)}	$\left[\begin{array}{rrr}1&0\\0&0\end{array}\right]$
補償子 <i>C</i> (x,y)∥(f,s), ρ _C = e ^{-iδ}	$\left[\begin{array}{cc} 1 & 0 \\ 0 & \rho_{\rm C} \end{array}\right]$
試料 S $(x,y) \parallel (p,s), \rho_S = \tan \Psi e^{i\Delta}$	$\left[\begin{array}{cc} \rho_{\rm S} & 0 \\ 0 & 1 \end{array}\right]$
座標回転 R (α) 半時計方向 α	$\begin{bmatrix} \cos \alpha & \sin \alpha \\ -\sin \alpha & \cos \alpha \end{bmatrix}$

うに変調されるかを調べて Ψ, Δ を得るものである.正 確度という点では消光型に劣るが,計測速度は極めて早 いため,その場診断やルーチンワークに用いられるよう になった [13].

本稿では測光型について述べる.まず,偏光素子(P, C,S,A)の働きを述べ,それらを通過した光強度の表式 を示す.次に具体的装置例として,回転検光子型,偏光 変調型,及び回転偏光子型について述べる.

7.1 偏光素子

代表的な偏光素子は,ある方位角の直線偏光を作る偏 光子 (**Polarizer**)である.検光子 (**Analyzer**)は,用途が 異なるために名称が異なるだけで,偏光子と全く同じも のである.光が透過する軸を t 軸 (transmission axis),透 過しない軸を e 軸 (extinction axis)という.ある方向の偏 光成分の位相を遅らせるのが,補償子 (**Compensator**) である.位相が遅れる軸を s 軸 (slow axis),進む軸を f 軸 (fast axis)という.後述の 1/4 波長板は, $\delta = \pi/4$ の 補償子である.試料 (Sample)表面にける反射の際には, 入射光の (p,s) 偏光成分の振幅,位相ともに任意の変化 を受ける.

代表的な偏光素子を Jones 行列で表したものを表2に 示す[6].これらの行列を Jones ベクトルに乗ずる事に よって,その偏光素子を通過(試料の場合は反射)した後 の偏光状態を表すベクトルを計算することができる.

なお,偏光素子は固有の座標系を持っており,表2の Jones 行列は,その素子固有の座標系のベクトルに対し て作用することを想定して記載されている.従って,偏 光状態を表すベクトルと偏光素子を表す行列の積を作る 前に,ベクトルの座標系を偏光素子行列の座標系に合う ように回転させる必要がある.そのときの行列が座標回 転行列(Coordinate rotation)である.

7.2 PCSA 構成における検出光強度

上記の偏光素子行列と方位角の違いを表す座標回転行 列の積によって,図7の検出器に入射する光の振幅(検 光子出力の t 成分のみ) を求めると,次のようになる.

$$\begin{bmatrix} E \\ 0 \end{bmatrix} = A R(A) S R(-C) C R(C)$$
$$R(-P) P L_{in}$$
(17)

$$E = \rho_{\rm S} \cos A [\cos C \cos(P - C) -\rho_{\rm C} \sin C \sin(P - C)] + \sin A [\sin C \cos(P - C) +\rho_{\rm C} \cos C \sin(P - C)]$$
(18)

光の強度は振幅の二乗であるから,実際に検出される光 の強度は,

$$I_{\rm D} = |E|^2 = GEE^*.$$
(19)

E* は E の複素共役.光学素子の透過・感度特性は無視した.細文字の P,C,A は各偏光素子の (p,s) 座標系に対する方位角である.

7.3 回転検光子型 (RAE)

検光子を回転させるのが回転検光子型偏光解析法 (Rotating Analyzer Ellipsometry; RAE) である.図8に装置の模式図を示す [27,28].補償子Cを用いない回転検光子型では,式(18)においてC = P, $\rho_C = 1$ に相当するから,式(19)の信号強度は,次式のようになる[29].

$$I_{\rm D} = I_0 (1 + \alpha \cos 2A + \beta \sin 2A) \tag{20}$$

$$\alpha = \frac{\left(\frac{\tan\Psi}{\tan P}\right)^2 - 1}{\left(\frac{\tan\Psi}{\tan P}\right)^2 + 1}, \quad \beta = \frac{2\left(\frac{\tan\Psi}{\tan P}\right)\cos\Delta}{\left(\frac{\tan\Psi}{\tan P}\right)^2 + 1}$$
(21)

検光子回転角 A に対する信号強度を Fourier 変換して α と β を求めれば, Ψ , Δ が得られる [30].

$$\tan \Psi = \tan P \sqrt{\frac{1+\alpha}{1-\alpha}}, \ \cos \Delta = \frac{\beta}{\sqrt{1-\alpha^2}}.$$
(22)

7.3.1 Pの設定





7.3.2 1/4 波長板の利用

 RAE では, △の情報が cos△として計測されるため, △の符号が不確定という欠点がある.この場合,補償子)として 1/4 波長板を方位角 45°で挿入した場合も測定する.cos△であったところが sin(△+2P)として観測されるので△の符号を特定できる [29,31,32].ただし,二度 手間である,分光測定が困難(任意波長に対して等しく 1/4 波長位相をずらす波長板が存在し得ない(PEM なら 対応可能)),という欠点がある.

7.4 位相変調型 (PME)

位相変調型偏光解析 (Phase Modulated Ellipsometry; PME) では,補償子として偏光変調素子 (Photo Elastic Modulator; PEM) を用いる.周波数 ω ,最大位相差 δ_0 で変調する PEM の場合には [33,34],

$$\rho_{\mathbf{M}} = \mathbf{e}^{\mathbf{i}\delta(t)} = \mathbf{e}^{\mathbf{i}\delta_0 \sin\omega t}.$$
(23)

δ(t) に対する信号強度変化は式 (19) より,

$$I_{\rm D}(\delta(t)) = I_{\rm O} + I_{\rm S} \sin[\delta(t)] + I_{\rm C} \cos[\delta(t)].$$
(24)

特に
$$P = 0^\circ \text{ or } 90^\circ$$
, $M = \pm 45^\circ$, $A = \pm 45^\circ$ の場合,

$$I_{\rm O} = (1 + \tan^2 \Psi) / 4,$$
 (25)

$$I_{\rm S} = I_0 \sin 2\Psi \sin \Delta, \qquad (26)$$

$$I_{\rm C} = I_0 \cos 2\Psi, \qquad (27)$$

$$\cos 2\Psi = I_{\rm C} / I_{\rm O}, \qquad (28)$$

$$\sin \Delta = I_{\rm S} / \sqrt{I_{\rm O}^2 - I_{\rm C}^2}.$$
 (29)

また $P = \pm 45^{\circ}$, $M = 0^{\circ}$ or 90° , $A = \pm 45^{\circ}$ の場合,

$$I_{\rm O} = (1 + \tan^2 \Psi) / 4, \qquad (30)$$

$$I_{\rm S} = I_0 \sin 2\Psi \sin \Delta, \qquad (31)$$

$$I_{\rm C} = I_0 \sin 2\Psi \cos \Delta, \qquad (32)$$

$$\sin 2\Psi = I_{\rm O} / \sqrt{I_{\rm S}^2 + I_{\rm C}^2},$$
 (33)

$$\tan \Delta = I_{\rm S} / I_{\rm C}. \tag{34}$$

しかし,実際に観測可能な時間変化としての $I_{D}(t)$ は Bessel 関数が必要で,

$$I_{\rm D}(t) = I_0 + I_1 \sin \omega t + I_2 \cos 2\omega t + \cdots, \quad (35)$$

$$I_0 = I_0 + I_C J_0(\delta_0), (36)$$

$$I_1 = 2I_{\rm S}J_1(\delta_0), \tag{37}$$

$$I_2 = 2I_{\rm C} J_2(\delta_0). \tag{38}$$

 δ_0 として , $J_0(\delta_0) = 0$ となる値 (2.405 rad) に設定すれば $I_0 = I_0$ となり ,

$$\sin 2\Psi \sin \Delta = \frac{I_{\rm S}}{I_{\rm O}} = \frac{I_{\rm 1}}{(2I_0 J_1(\delta_0))},$$
 (39)

$$\cos 2\Psi = \frac{I_{\rm C}}{I_{\rm O}} = \frac{I_2}{(2I_0 J_2(\delta_0))}.$$
 (40)

即ち,直流成分に対する基本波と倍長波成分の比を測定 することにより偏光解析パラメータが得られる.直流成 分は Low Pass Filter で,基本波と倍長波は Lock-in 測定で得られる.深沢等は,分光計測時に $J_0(\delta_0) = 0$ がどの波長でも満たされるように,各波長での PEM 印加電 圧を調節する工夫をしている [35].

PME は RAE のように機械的回転による変調では無い ため変調スピードは 20–100 kHz と高速であり,その場 診断などに有効である.ただし,Ψ や Δ の符号を特定 しようとすると,上記二つの光学系でしなければならな いのが欠点である.

7.5 回転補償子型 (RCE)

以上二つの測光型は光強度の直流成分を必要とするため,迷光が関与する場合には工夫が必要となる.回転補 償子型 (Rotating Compensator Ellipsometery; RCE) で は,変調成分だけで偏光解析パラメータが算出でき(チョッパーを用いたような状況),迷光の影響を抑制でき る [36,37].式 (19) にて C = P として計算すると,

$$I(C) = I_0 + I_{C2}\cos 2C + I_{C4}\cos 4C + I_{S2}\sin 2C + I_{S4}\sin 4C.$$
(41)

sin 2A = ±1(cos 2A = 0) と設定すれば,

$$\tan \Psi = 1/\sqrt{1-4\alpha}, \quad \cos \Delta = \pm \beta/\sqrt{1-4\alpha} \quad (42)$$

$$\alpha = I_{\rm C4}/I_{\rm C2} \ , \ \beta = I_{\rm S2}/I_{\rm C2} \tag{43}$$

であり, Ψ, Δを求めるために必要なのは, 変調成分の 係数の比だけとなる.

8 有効媒質近似 (EMA)

偏光解析法において膜の構造や組成を知るには,適当 なモデルで計算した $\Psi \ge \Delta$ が実測値と一致するように モデルのパラメータ(組成比等)を決める.薄膜の組成 が全く未知の場合には, Ψ, Δ から直接 n, k を求める事 になる.基板の光学特性が既知で,膜厚が既知の単層薄 膜であれば,未知数と測定データ数が共に2であるた め,原理的には Ψ, Δ から n, k を求めることができる 膜厚が未知の場合でも,多入射角を用いることにより 未知数に対する測定データ数を増やすことができ,n, kを求めることができる(多波長化によるデータ数の増加 は,n, k が変わってしまう可能性があるので注意が必要 である).

各層の組成が未知の多層膜については,上記手法は使 えず,残念ながらエリプソメトリの適用は無意味となる. しかし,可能性のある組成が既知で,組成比のみが未知 の場合については,組成比から実効的な誘電関数を計算 する有効媒質近似法(Effective Medium Approximation; EMA)を用い,組成比を未知数としたフィッティングが 可能となる[38-40].

有効媒質近似として, Bruggeman の EMA が利用されることが多い.二組成の場合には以下の式を解くことで混合媒質の誘電率を求めることができる.求解には複素数を変数とする Newton 法を用いるとよい.

$$0 = f_{a} \frac{\epsilon_{a} - \epsilon}{\epsilon_{a} + 2\epsilon} + f_{b} \frac{\epsilon_{b} - \epsilon}{\epsilon_{b} + 2\epsilon}.$$
 (44)

ここで, f_i は組成比, e_i は構成物の固有誘電率, e は混 合物の誘電率である.加算項を増やすことで三組成以上 に対応することができる.

9 偏光解析パラメータの計算

偏光解析パラメータ Ψ と Δ は,媒質の誘電関数(又は 複素屈折率),厚み,光入射角を用いて計算できる.こ こでは無限厚基板上の薄膜を例題とする.

9.1 薄膜表面のΨとΔ

図9のように,薄膜で覆われた表面に光が入射した場合には,媒質0と媒質1の界面での実効的な反射率には,媒質1中の多重反射の効果が含まれる.

媒質 0 と媒質 1 の界面における実効的な反射率は p,s 成分ともに,

$$R_{01} = r_{01} + t_{01}t_{10}r_{12}e^{-i2\beta} + t_{01}t_{10}r_{10}r_{12}^{2}e^{-i4\beta} + t_{01}t_{10}r_{10}^{2}r_{12}^{3}e^{-i6\beta} \cdots$$
(45)

βは媒質1中の片道の位相変化分である.

$$\beta = 2\pi (d_1/\lambda) N_1 \cos \phi_1. \tag{46}$$

後述の Fresnel の法則から

$$r_{10} = -r_{01}, (47)$$

$$t_{10} = (1 - r_{01}^2) / t_{01}$$
(48)

であることと,無限等比級数和公式を用いて,

$$R_{01} = \frac{r_{01} + r_{12} \mathrm{e}^{-\mathrm{i}2\beta}}{1 + r_{01} r_{12} \mathrm{e}^{-\mathrm{i}2\beta}}.$$
 (49)

この R₀₁ の p,s 成分の比が複素反射率比となる.

$$\rho = \frac{R_{01p}}{R_{01s}} = \tan \Psi \,\mathrm{e}^{\mathrm{i}\Delta} \tag{50}$$

以上の計算で付録の Snell の法則と Fresnel の反射率や 透過率の式を必要とする [2,4-6].

9.1.1 多層解析時のアルゴリズム

最下層に到達するまで透過(屈折)と反射に関する計算 式は上記の単層の場合と全く同じであるため,表3のように,同じサブルーチンを再帰的に利用して計算を行う ことができる.



図 9: バルクおよび薄膜表面での光の反射のモデル.

9.2 バルクの光学定数の決定

媒質0から半無限大の厚みを有する媒質1へ光が入射 する場合にはR₀₁ = r₀₁となる.この場合,媒質0(雰囲 気)の屈折率と入射角が既知であれば,複素反射率比を 計測することにより,次式により媒質1の複素屈折率を 決定することができる.

$$N_1 = N_0 \sin \phi_0 \left[1 + \left(\frac{1-\rho}{1+\rho}\right)^2 \tan^2 \phi_0 \right]^{1/2}.$$
 (51)

薄膜の場合でも,吸収によって界面まで光が到達しない 短波長側では,バルクと見なして解析できる.また,基 板についても,透明基板の場合には,裏面に計測波長と 同程度の荒れをつけ,裏面到達後の偏光状態を消滅させ ると,無限厚の基板として扱える.

表 3: 多層膜の場合の R_{01} を得る再帰的アルゴリズム . 各層の $N_i, \sin\phi_i, \cos\phi_i, \beta_i, \exp[-i2\beta_i]$ は予め計算されていることを 想定している .

```
//
//関数名:Calc_R_Eff( i, j )
//クラス:reflex = { dcomplex, dcomplex }
//機 能:第i層からその下の第j層を見たときのp偏光と
//s 偏光の複素反射率を計算して戻すこと.複素反射率比
//はこの関数の戻り値 R_Eff=Calc_R_Eff(i,j) を利用して
//R_Eff.p / R_Eff.s によって得る.
11
reflex Calc_R_Eff( int i, int j )
 int k;
dcomplex e_i2B;
 reflex r_ij, r_ij_eff, r_jk_eff;
 if( j == Max_Index_of_Layers ) {/*最下層については*/
   r_ij_eff = CalcR(i,j); /*フレネルの式のみ*/
 3
                               /*それ以外は */
/*自分自身を使って*/
 else {
              = j + 1;
   k
             = Calc_R( i, j ); /*再帰的に計算
= Calc_R_Eff( j, k );
= Exp_i2B[j];
   r_ij
r_jk_eff
e_i2B
                                              */
   }
 return r_ij_eff;
}
//「関数名:Calc_R( i, j )
//クラス:reflex = { dcomplex, dcomplex }
//機 能:第i層からその下の第j層を見たときのp偏光と
//s 偏光のフレネルの反射率を計算して戻す.
11-
reflex Calc_R( int i, int j )
ſ
 dcomplex n_i, n_j, cos_phi_i, cos_phi_j;
 reflex r_ij;
 n_i = Refractive_Index_of_Layer[i];
 cos_phi_i = CosPhi[i];
n_j = Refractive_Index_of_Layer[j];
 cos_phi_j = CosPhi[j];
 return r_ij;
7
//---
```



図 10: c-Si 基板上の透明薄膜の屈折率/膜厚決定のためのチャー ト図.プロープ光波長は 632.8 nm (He-Ne Laser).その波長 に対する c-Si の複素屈折率として N = 3.88 – i0.0198 を用い た.光の入射角は 60°とした.

9.3 薄膜の光学定数の決定

偏光解析法の利用目的としては,薄膜の膜厚と屈折率 の測定が最も多いと思われる.透明な (k = 0 の)薄膜の 場合には,未知数が屈折率 n と膜厚 d のみであるため, 適当な n, d を与えれば,表 3 によって $\Psi \ge \Delta$ が計算 できる (d は膜中の光の伝搬を既述する β の項に入る). この計算結果と計測値が一致するようにn, d をフィッ ティングする.古くからn, d をパラメータとした図 10 の様なチャートが用いられ,膜厚と屈折率が測定された.

現在は計算機フィッティングが主流であるが, Ψ 及び Δ の領域によって正確度が大きく異なる, ということが 忘れられている場合が多い.この図から, Ψ = 10 - 20° では,そこから決まる屈折率に大きな不確定性があるこ とが読みとれる(屈折率が異なってもΨに大きな違いが 出ない).計算機出力を鵜呑みにすると良くない例であ る.なお,分光化や多入射角化すれば不確定性が軽減さ れる.

10 測定上の注意事項

10.1 入射角 ϕ_0

 Ψ や Δ は解析対象である物質の物性と構造に加えて 入射角にも依存する.物質ごとに最適感度の入射角があ り[41],角度可変の偏光解析装置もある[42].また,対 象とする媒質の光学定数によっては,入射角の 0.1°の 違いが大きく Ψ , Δ に影響を及ぼす場合もある.従って, 分度器的な感覚による機械的角度校正は無意味となる.

エリプソメトリにおける入射角校正は,次のようにエ リプソメトリそのものを使って行っている.光学特性が 既知のバルク物質 (c-Si など)のΨ やΔを測定すると, 前節のバルクの式で未知パラメータは入射角 φ₀ のみで あり,これをフィッティングによって求める.なお,測 定対象が理想的なバルク&鏡面の条件を満たす必要があ る(自然酸化膜を除去した単結晶シリコンが入手し易く 光学特性も整備されている[43,44]).或いは,酸化等に よる汚染の影響が少ない Au の蒸着膜などが利用される ことが多い.



図 11: c-Siの tan Ψ と cos Δ の入射角依存性の計算結果.これ

が計測結果と一致したときの入射角が計測系の入射角である.

10.2 物質の光学特性について

物質の屈折率のリファレンスデータ [45] は, 理想的な バルク状態 (=厚い, 鏡面) の物質を作製し, 第9.2 節の手 法で決定されている場合が多い. 但し, それらは室温で のデータであることが多く, 高い基板温度のプロセス診 断には使えない. その時は,式(51)を用いて, 室温以外 の複素屈折率のデータを自作する. c-Si についてはデー タが整備されている [43,44].

10.3 分光化の効用

分光偏光解析法は,単一波長時に生じる不確定性を抑 制すると同時に,複数組成や多層膜解析時に威力を発揮 する.複数組成時には,組成による誘電関数スペクトル の違いを利用し,多層解析時には,波長による潜り込み 深さの違いを利用する.但し,この場合も以下のような 点に注意が必要である.

分光偏光解析法を複数組成の物質の解析に用いる場合, 屈折率(誘電率)の分散関係(波長依存性)が,物質ごと に特徴を有していることが必要である.例えば,結晶シ リコンとアモルファスシリコンでは,その誘電関数に図 12のような違いがある.この違いが Ψ 及び Δ にどのよ うに反映されるかを計算したのが図 13 である.これよ り,組成比が異なることで, Ψ や Δ にもその違いが反映 されていることが分かる.しかし, Ψ や Δ と誘電関数 の関係は複雑であるため,よほど熟練していても誘電関 数の違いが Ψ や Δ にどのように反映されるかは,計算



図 12: 結晶シリコンとアモルファスシリコンの誘電関数.ア モルファスシリコンは水素化されていない場合である.

をしてみないと分からない.例えば,図 12 において 4 eV 付近に注目すると,結晶とアモルファスで誘電関数 スペクトルの「構造」には違いが見られるが, Ψ , Δ には 大きな差がない. Ψ , Δ に違いがあるのは,誘電関数ス ペクトルの構造に違いはないが「絶対値」が異なる 2–3 eV 付近であることが分かる.

またアモルファスシリコンの場合には,水素化されて いる場合がほとんどなので,図14のように,その水素 化の度合いによっても誘電関数は変わる[46].

10.4 感度

膜厚,組成比の微少変化に対する偏光解析パラメータ の変化率も重要であり,フィッティングの正確度を左右 する.高感度の波長域は対象物質の光学特性に依存する ため,多くの物質に対応するためには広範囲波長を取得 する分光化 [8,9,11–13] や多入射角化 [41,42] が有効と なる.

10.5 分光偏光解析データの解釈のときに ...

波長領域で区切って考えると,短波長領域では,物質 の吸収係数は大きくなるため,底面に光が到達する以前 にほとんど吸収を受けてしまい,計測結果に反映されて いるのは,膜の上層部の組成や構造であると言える.特 に,表面のラフネスなどは200 nm 近傍の短波長領域の Ψ や Δ に影響を及ぼす.一方,中ぐらいの波長域では,



Photon energy /eV

図 13: SiO₂上に膜厚 100 nm で存在していると仮定した場合の,結晶シリコン薄膜とアモルファスシリコン薄膜の $\Psi \ge \Delta$ のスペクトル.50%/50%で混合した場合についても示してある.

バルク全体の情報が膜厚方向に平均化された形でデータ が取得されていることになる.更に長波長になると,膜 の上層部と下層部(底面=膜/基板界面)の間で繰り返さ れる多重反射によって膜厚の情報が含まれることになる.

以上のようなことから,例えば分光エリプソメトリーでは一般に透明な膜の膜厚しか分からないが,不透明で あっても,長波長域では減衰係数が比較的小さく,「透明」と仮定できる場合がある.そのような場合には,長 波長側だけをフィッティングするという手もある.

また,臨界角近傍の入射角で計測を行うと,反射に 伴って位相差が大きく変わるので,極めて微少な表面の 変化でもΔが大きく変わるということも利用できる.但 し,表面の何が変わったかまでは分からないのが欠点で あるので,清浄表面を常に維持する必要があるときなど の応用に限られると思われる.

11 固定波長のトラジェクトリー解析

11.1 成膜過程 (核発生·核成長)

トラジェクトリー解析とは,薄膜堆積などの進行に 伴って $\Psi \wedge \Delta$ の値が変化していく様子を軌跡として計 測し,堆積モデルから得られる計算結果と比較して,膜 堆積様式などを議論するものである [10,47].核発生 核成長によって説明される成長様式の核間距離等を明 らかにするのに利用された.縦軸横軸は, Ψ , Δ 以外に も tan Ψ , cos Δ であったりする.また,多層であっても



図 14: 水素化アモルファスシリコンの誘電関数の理論的計算 値.一つの Si に対する水素化の程度によって,誘電分散ビー クの位置が高エネルギー側にシフトするとともに,ピークの 半値幅が大きくなる (プロードになる).

バルクと同じ式を用いて「実効的な」誘電率を算出し、 < ε₁ >, < ε₂ > と標記する場合もある.実効的誘電率でプ ロットすると次の利点がある.Ψ やΔ では図から物性 的な情報を読みとるのが困難であるが,誘電率にしてお けば,少なくとも始点と収束点はバルクの誘電率と一致 するはずなので,どのような物性の基板上にどのような 膜がついているのかがわかりやすい.

トラジェクトリーの起点は基板によってきまる Ψ と Δ である.この基板上に膜が堆積し始めると,屈折率や 吸収係数の異なる物質が基板上につくために Ψ と Δ が 膜厚増加とともに変化する.完全透明な物質では,トラ ジェクトリーは多重干渉によって永久ループを描く.シ



図 15: 核発生・核成長モデルとレイヤーバイレイヤーモデル の場合のトラジェクトリーの計算結果 [10].初期発生する核 間の距離によってトラジェクトリの屈曲点が異なる.



図 16: トラジェクトリーの例 [48].

リコン上の酸化膜堆積を He-Ne レーザ光 (632.8 nm) で 測定した場合などに相当する.ガラス基板上の a-Si:H の 場合に吸収の比較的ある波長域で測定をすると, a-Si:H の厚みが十分厚くなると, 膜/基板界面からの反射光が 上面まで届かなくなり,バルクと同じ状況となる.即ち, 吸収のある薄膜を堆積した場合には, $\Psi \ D \Delta$ の軌跡はそ のバルク膜の光学定数できまる Ψ , Δ の点に収束する.

これを利用すると, 堆積膜の素性が未知でもある程度 解析できる.まずトラジェクトリーが収束するまで計測 し, 収束点のΨとΔからその物質のバルクの時のn,k を算出する.そのn,kを用いて単純に膜厚を増加させた ときに描くトラジェクトリーと実験結果とを比較する 計算結果と実測値が一致すれば,そのn,kの値で特徴づ けられる物質が単純に膜厚を増加させている.一致しな ければ,島状成長モデルで合うかなどを議論できる.

図15は,成長様式で異なる核間距離の場合のトラジェクトリー(計算値)である[10].トラジェクトリーの屈曲 点が核間距離によって異なることを利用して解析できる.

我々が計測したトラジェクトリーを図 16 に示す [48]. この例では,100% SiH4 と Ar 希釈の SiH4 の場合の成 膜状態を示している. 印が実測値である.破線は,収 束点から求めた薄膜の実効的光学定数を用い,その物性 を示す膜の膜厚だけを増やした場合の計算結果である. 破線は実測値とは一致しておらず,成膜中に構造・組成 変化を伴っていることを示している.最も良く一致した モデルが同図中に示されており,ある程度の膜厚までラ フネスが増加し,その後,一定のラフネスで成膜が進行 するというモデルで説明される.

11.2 エッチング過程

図 17 は, PECVD で堆積した a-Si:H に水素プラズマ を照射した際にエッチングされる様子をモニタリングし た例である [49].図から分かるように,成膜進行によっ て生じた軌跡と全く同じ軌跡を逆戻りしており,膜構造 や物性が変わることなく単純に膜厚のみが減少している ことを示している.

一方,図18は,もう少し厚い膜を堆積してから水素



図 17: PECVD で一旦 a-Si:H を成膜した後に,水素プラズマ 処理を行ったときに観測されたトラジェクトリーの逆行.この 結果は単純な膜厚減少のみで説明が可能である[49].



図 18: 水素プラズマ処理を行ったときに単純な逆行とは異なる 軌跡を描いた例.この結果は,単純な膜厚減少に加えて表面の 凹凸発生や結晶化を考慮することで説明が可能となった[49].

プラズマを照射した例である.単純エッチングの場合と 異なり,独自のトラジェクトリーを描いて逆戻りしてい る.水素プラズマ処理が a-Si:H の結晶化を促す効果が あることが知られていたので,我々はモデルに表面の結 晶化とラフネスの発生などを考慮してシミュレーション した.その結果が図の右側に示されており,実験結果と 比較的良い一致を見せている.

12 分光エリプソメトリ

12.1 多層・多相解析

分光エリプソを用いた多層膜解析に関する報告は多数 あるので[15],ここではその一つを紹介するにとどめ る[50].

多層構造の解析を行う多くの場合,断面 TEM に頼る 事になる.ここで紹介するのは,TEM の結果と分光エ リプソの結果を比較した例である.図19が比較結果で ある.エリプソで得られた各層の厚みが TEM の結果と が極めて良く一致しており,かつ組成に関しても結晶性 の大小をよく反映している.図20は計測された分光エ リプソのスペクトルとフィッティング結果であり,良く 一致していることがわかる.このように非破壊で TEM レベルの情報が得られるのが分光エリプソの特徴と言 える.

なお,エリプソだけで評価した結果をみて,TEMで 測れば必ず同様の組成と膜厚で観測される」,と完全に



図 19: c-Si に Si のインプラを行った後の断面構造評価結果の 比較.左:XTEM による.右:分光エリプソによる.(引用文 献には写真が掲載されているが,PDFの写真が極めて粗いた め,印刷された論文を参照されたい[50].



図 20: c-Si に Si のインプラを行ったサンプルの分光エリプソ スペクトル (破線) と, Fig.19 のモデルでフィッティングした 結果 (実線) [50].

信じることが,私には出来ない.TEMによる破壊的な 評価がどうしても出来なかったり,その場診断が必要な ときの「奥の手」と位置づけるのがよいと考えている. そういう時こそエリプソが活きていると言える.

12.2 ラフネス解析

最表面のラフネスは一般に AFM などによって解析されるが,その場診断できないのが欠点である.ラフネスを空隙含有の物質と仮定できる場合には,偏光解析法が有効である.多層構造を仮定し,最表面層は空隙含有膜の有効媒質近似によってラフネスを表現する.波長領域としては短波長領域が最も影響が大きく,ラフネスを表現する組成比としては,空隙含有率50%程度が最もスペクトルに変化をもたらす.偏光解析法はその場診断に使えるという利点があるが,AFM と偏光解析で得られるラフネスの関係は議論の対象となる.成膜を止めた後の測定結果を比較して妥当性を調べることが必要である[51–53].

12.3 基板温度モニター

先の項目で,物質の誘電特性が温度に依存することを 示した.これを逆に利用すると,偏光解析による基板表 面温度のモニターが可能である[54].例えば,シリコン ウエハの場合には,整備された複素屈折率の温度依存性 を用いると[55],図21のようなチャートが得られる.同 図から,入射角が大きい程,温度に対してΔの変化が大 きい,即ち敏感となることがわかる.



図 21: 波長 630 nm の光に対するシリコンウェハの複素屈折率 の温度依存性 [55] と、そのデータを元にした Ψ と Δ の温度 依存性を入射角 60°, 65° 及び 70°について計算した結果、測 定波長は安価な He-Ne レーザを想定した。

13 まとめ

以前は数千万円していた分光エリプソメータも,最近では900万円台で市場に現れており,まとまった研究費を獲得した場合には,比較的入手し易いツールとなったと思われる.

ただ, GUI を多用したユーザインターフェースも手 伝って,比較的扱い易いエリプソメータが多数市場に現 れているためか,あまり中味を知らずにオペレートして いる学生さんも多いようである(UVVIS も含めて).

こうした現状においては,古典的学問ではあるが,今 一度,透過(屈折)と反射,という現象をよく理解して装 置をオペレートして欲しいと思う.

謝辞

本稿を執筆する機会を頂いた応用物理学会東海支部各 位に感謝します.

付録

A Snellの法則と屈折率

Snell の法則とは,1600年代の初めにオランダの数学者 Snell が発見した光の屈折に関する法則である.屈折率とは,この屈折の度合いを表す実数のパラメータであったが,複素屈折率についても同じ関係式が成り立つ.図9(b)において Snell の法則をこの屈折率を用いて表すと,

$$N_0 \sin \phi_0 = N_1 \sin \phi_1 = N_2 \sin \phi_2. \tag{52}$$

となる.

B Fresnel の反射率,透過率

図 9(b) に示した各界面での反射率は,以下に示す Fresnel の反射率・透過率によって表すことができる.

$$r_{01p} = \frac{N_1 \cos \phi_0 - N_0 \cos \phi_1}{N_1 \cos \phi_0 + N_0 \cos \phi_1},$$
(53)

$$r_{01s} = \frac{N_0 \cos\phi_0 - N_1 \cos\phi_1}{N_0 \cos\phi_0 + N_1 \cos\phi_1},$$
 (54)

$$r_{12p} = \frac{N_2 \cos\phi_1 - N_1 \cos\phi_2}{N_2 \cos\phi_1 + N_1 \cos\phi_2},$$
 (55)

$$r_{12s} = \frac{N_1 \cos \phi_1 - N_2 \cos \phi_2}{N_1 \cos \phi_1 + N_2 \cos \phi_2},$$
 (56)

$$t_{01p} = \frac{2N_0 \cos\phi_0}{N_1 \cos\phi_0 + N_0 \cos\phi_1},$$
 (57)
$$\frac{2N_0 \cos\phi_0}{N_1 \cos\phi_0}$$

$$t_{01s} = \frac{2N_0 \cos \phi_0}{N_0 \cos \phi_0 + N_1 \cos \phi_1},$$
 (58)
$$\frac{2N_1 \cos \phi_1}{N_0 \cos \phi_1}$$

$$t_{12p} = \frac{1}{N_2 \cos \phi_1 + N_1 \cos \phi_2}, \qquad (59)$$
$$\frac{2N_1 \cos \phi_1}{2N_1 \cos \phi_1}$$

$$t_{12s} = \frac{2N_1 \cos \phi_1}{N_1 \cos \phi_1 + N_2 \cos \phi_2}.$$
 (60)

参考文献

- [1] S. G. Tomlin: Brit. J. Appl. Phys. 1 (1968) 1667.
- [2] M. Born and E. Wolf: Principles of Optics, 7th Edition (Cambridge University Press, New York, 1993).
- [3] O. Stenzel: The Physics of Thin Film Optical Spectra An Introduction (Springer-Verlag, Berlin, 2005).
- [4] R. M. A. Azzam and N. M. Bashara: *Ellipsometry and Polarized Light* (North-Holland, Amsterdam, 1999).
- [5] 藤原裕之: 分光エリプソメトリー (丸善, 東京, 2003).
- [6] H. Fujiwara: Spectroscopic Ellipsometry (John Wiley and Sons, Chichester, West Sussex, 2007).
- [7] H. G. Tompkins and E. A. Irene: Handbook of Ellipsometry (William Andrew Publishing and Springer-Verlag, Norwich and Heidelberg, 2006).
- [8] J. B. Theeten: Surf. Sci. 96 (1980) 275.
- [9] J. B. Theeten and D. E. Aspnes: Ann. Rev. Mater. Sci. 11 (1981) 97.
- [10] R. W. Collins: Amorphous Silicon and Related Materials (Ed. H. Fritzsche) (World Scientific Publishing Company, Hackensack, New Jersey, 1988) Chap. 5; Ellipsometric study of a-Si:H nucleation, growth and interfaces p. 1003.
- [11] R. W. Collins, I. An, H. V. Nguyen and Y. Lu: Thin Solid Films 233 (1993) 244.
- [12] E. A. Irene: Thin Solid Films 233 (1993) 96.
- [13] R. W. Collins, J. Koh, H. Fujiwara, P. I. Rovira, A. S. Ferlauto, J. A. Zapien, C. R. Wronski and R. Messier: Appl. Surf. Sci. 154-155 (2000) 217.
- [14] U. Rossow and W. Richter: Optical Characterization of Epitaxial Semiconductor Layers (Ed. G Bauer and W Richter) (Springer-Verlag, Berlin, 1996) Chap. 3 Spectroscopic Ellipsometry p. 68.
- [15] Ed. J. E. Greene: Proceedings of The 1st International Conference on Spectroscopic Ellipsometry, Paris, France, Jan. 11-14, 1993 (Elsevier, Lausanne, 1993); Thin Solid Films, 233, Nos.1-2.
- [16] C. Kittel: Introduction to Solid State Physics (John Wiley and Sons, New York, 1986).
- [17] A. Röseler: Infrared Phys. 21 (6) (1981) 349.

- [18] B. Drevillon and R. Benferhat: J. Appl. Phys. 63 (1988) 5088.
- [19] A. Röseler: Mikrochim. Acta II (1988) 79.
- [20] M. Schubert, T. Hofmann and C. M. Herzinger: J. Opt. Soc. Am. A 20 (2) (2003) 347.
- [21] M. Schubert, T. Hofmann and C. M. Herzinger: Thin Solid Films 455-456 (2004) 563.
- [22] T. Nagashima and M. Hangyo: Appl. Phys. Lett. 79 (2001) 3917.
- [23] Y. Ino, R. Shimano, Y. Svirko and M. Kuwata-Gonokami: Phys. Rev. B 70 (2004) 155101.
- [24] R. J. Archer: J. Opt. Soc. Am. 52 (9) (1962) 970.
- [25] N. V. Smith, Y. Komiya and R. H. Weissman: Solid-state Electron. 12 (1969) 765.
- [26] 小宮祥男, 坂本統徳, 垂井康夫: 応用物理 41 (6) (1972) 589.
- [27] Y. Hayashi and A. Itoh: Appl. Opt. 28 (4) (1989) 703.
- [28] Y. Hayashi: Jpn. J. Appl. Phys. 29 (11) (1990) 2514.
- [29] P. S. Hauge and F. H. Dill: IBM J. Res. Devel. (1973) 472.
- [30] D. E. Aspnes: Opt. Commun. 8 (3) (1973) 222.
- [31] 林康明, 松沢昭生, 福留理一: 真空 25 (1982) 106.
- [32] 林康明, 伊藤昭夫: 真空 26 (1983) 481.
- [33] S. N. Jasperson and S. E. Schnatterly: Rev. Sci. Instr. 40 (6) (1969) 761.
- [34] J. I. Treu, A. B. Callender and S. E. Schnatterly: Rev. Sci. Instr. 44 (7) (1973) 793.
- [35] T. Fukazawa: Jasco Report **35** (2) (1993) 15.
- [36] R. W. Stobie, B. Rao and M. J. Dignam: J. Opt. Soc. Am. 65 (1) (1975) 25.
- [37] A. E. Naciri, L. Broch, L. Johann and R. Kleim: Thin Solid Films 406 (2002) 103.
- [38] D. G. A. Bruggeman: Ann. Phys. Lpz. 24 (1935) 636.
- [39] D. E. Aspnes: Am. J. Phys. 58 (8) (1982) 704.
- [40] D. Stroud: Superlattices and microstructures 23 (3-4) (1998) 567.
- [41] J. R. Zeidler, R. B. Kohles and N. M. Bashara: Appl. Opt. 13 (7) (1974) 1591.
- [42] P. G. Snyder, M. C. Rost, G. H. Bu-Abbud and J. A. Woollam: J. Appl. Phys. **60** (1986) 3293.
- [43] G. E. Jellison and F. A. Modine: Phys. Rev. B 27 (12) (1993) 7466.
- [44] G. E. Jellison and F. A. Modine: Optical Functions of Silicon at Elevated Temperatures Determined by Polarization Modulation Ellipsometry (Oak Ridge National Laboratory, Tennessee, 1985).
- [45] Ed. E. D. Palik: Handbook of Optical Constants of Solids Vol.1, 2, 3 (Academic Press, San Diego, 1998).
- [46] K. Mui and F. W. Smith: Phys. Rev. B 38 (15) (1988) 10623.
- [47] R. W. Collins and J. M. Cavese: J. Appl. Phys. 62 (10) (1987) 4146.
- [48] T. Shirafuji, W. M. Chen, M. Yamamuka, T. Genji and K. Tachibana: Jpn. J. Appl. Phys. **32** (11A) (1993) 4946.
- [49] T. Shirafuji, H. Kondo and K. Tachibana: Jpn. J. Appl. Phys. 35 (4A) (1996) 2047.
- [50] K. Vedam and P. J. McMarr: Appl. Phys. Lett. 47 (1985) 339.
- [51] D. E. Aspnes and J. B. Theeten: Phys. Rev. B 20 (1979) 3929.
- [52] S. Logothetidis: J. Appl. Phys. 65 (6) (1989) 2416.
- [53] H. Fujiwara, M. Kondo and A. Matsuda: Phys. Rev. B 63 (2001) 115306.
- [54] R. K. Sampson, K. A. Conrad, E. A. Irene and H. Z. Massoud: J. Electrochem. Soc. 140 (6) (1993) 1734.
- [55] G. E. Jellison, Jr. and F. A. Modine: J. Appl. Phys. 76 (1994) 3758.