

非镜面膜的椭偏研究

张淑芝 王志刚 李淑英
(山东大学光学系, 济南 250100) (山东大学光电所, 济南 250100)

提 要

本文提出了 $\text{SnO}_2:\text{F}$ 绒面膜的三层膜模型; 从表示平面波传播性质的界面矩阵和膜层矩阵出发, 导出了三层膜系统的散射矩阵和总反射系数, 建立了反射式椭偏术的基本公式; 利用反射式椭偏光谱法, 测得 $\text{SnO}_2:\text{F}$ 绒面膜的厚度和色散关系。

关键词 $\text{SnO}_2:\text{F}$ 绒面膜, 界面膜, 散射矩阵, 椭偏光谱法。

1 引 言

以 $\text{SnO}_2:\text{F}$ 绒面膜作为太阳能电池的透明导电减反射膜, 为了同时测定其膜厚和折射率, 最有效的方法是椭偏测量术。反射式椭偏术要求膜表面清洁光滑(也称镜面)。 $\text{SnO}_2:\text{F}$ 绒面膜表面呈颗粒状, 不能看成镜面。根据椭偏测量结果若仍作为单层透明膜来进行计算, 得到的折射率将是错误的。为解决这一困难, 将 $\text{SnO}_2:\text{F}$ 绒面膜与空气的交界面等效为某一厚度的膜层, 与衬底玻璃的交界面也作为一等效膜层, 这样就把在玻璃衬底上的 $\text{SnO}_2:\text{F}$ 绒面膜等效成三层透明膜模型来研究, 这将更符合实际情况。

2 $\text{SnO}_2:\text{F}$ 绒面膜的三层透明膜模型

玻璃衬底上的 $\text{SnO}_2:\text{F}$ 绒面膜, 颗粒较大, 其表面形成凹凸不平的结构。将该膜看成包含两个界面膜的三层透明膜系统, 其厚度依次为 d_1, d_2, d_3 , 折射率为 n_1, n_2, n_3 。 $\text{SnO}_2:\text{F}$ 的颗粒愈大, 界面膜的厚度愈厚。每层膜的光学性质是均匀的, 只在两层膜之间的界面处有折射率的突变。

设 E^+ 和 E^- 分别为向前和向后行进的单色平面波的电场强度复振幅, 当波通过界面 ab 时^[1],

$$\begin{bmatrix} E_a^+ \\ E_a^- \end{bmatrix} = I_{ab} \begin{bmatrix} E_b^+ \\ E_b^- \end{bmatrix}. \quad (1)$$

其中 I_{ab} 为界面矩阵:

$$I_{ab} = \frac{1}{t_{ab}} \begin{bmatrix} 1 & r_{ab} \\ r_{ab} & 1 \end{bmatrix}. \quad (2)$$

t_{ab} 和 r_{ab} 分别是界面 ab 上的费涅尔透射和反射系数。

当波通过膜层 bc 时,

$$\begin{bmatrix} E_b^+ \\ E_b^- \end{bmatrix} = L \begin{bmatrix} E_c^+ \\ E_c^- \end{bmatrix}. \quad (3)$$

其中 L 为膜层矩阵:

$$L = \begin{bmatrix} e^{i\beta} & 0 \\ 0 & e^{-i\beta} \end{bmatrix}. \quad (4)$$

β 为相位厚度:

$$\beta = \frac{2\pi dN}{\lambda} \cos \phi. \quad (5)$$

d 为膜层厚度, N 为厚层折射率, λ 为入射波长, ϕ 为波在膜层中传播方向与膜层界面法线间夹角.

当波由空气(a)经过一系列的界面和膜层进入衬底(f)时,并考虑到总有 $E_f^- = 0$,

$$\begin{bmatrix} E_a^+ \\ E_a^- \end{bmatrix} = S \begin{bmatrix} E_f^+ \\ 0 \end{bmatrix}. \quad (6)$$

其中 S 为系统的散射矩阵:

$$S = \begin{bmatrix} S_{11} & S_{12} \\ S_{21} & S_{22} \end{bmatrix}. \quad (7)$$

对于本文讨论的三层膜系统,光波由空气(0)传播到衬底玻璃(4),要经三个膜层和四个界面,显然

$$S = I_{01} \cdot L_1 \cdot I_{12} \cdot L_2 \cdot I_{23} \cdot L_3 \cdot I_{34}. \quad (8)$$

将(2)、(4)式界面和膜层矩阵加上相应的脚标代入,再完成矩阵乘法,得到矩阵元:

$$S_{11} = F [(a + be^{-i2\beta_1} r_{23}) + (ar_{23} + be^{-i2\beta_1}) e^{-i2\beta_1} r_{34}], \quad (9)$$

$$S_{12} = F [(a + be^{-i2\beta_1} r_{23}) r_{34} + (ar_{23} + be^{-i2\beta_1}) e^{-i2\beta_1}], \quad (10)$$

$$S_{21} = F [(c + de^{-i2\beta_1} r_{23}) + (cr_{23} + de^{-i2\beta_1}) e^{-i2\beta_1} r_{34}], \quad (11)$$

$$S_{22} = F [(c + de^{-i2\beta_1} r_{23}) r_{34} + (cr_{23} + de^{-i2\beta_1}) e^{-i2\beta_1}]. \quad (12)$$

其中

$$F = \frac{e^{i(\beta_1 + \beta_1 + \beta_1)}}{t_{01} \cdot t_{12} \cdot t_{23} \cdot t_{34}}, \quad (13)$$

$$a = 1 + r_{01} r_{12} e^{-i2\beta_1}, \quad b = r_{12} + r_{01} e^{-i2\beta_1}, \quad c = r_{01} + r_{12} e^{-i2\beta_1}, \quad d = r_{01} r_{12} + e^{-i2\beta_1}.$$

三层膜系统的总反射系统:

$$R = \frac{E_a^-}{E_a^+} = \frac{S_{21}}{S_{11}}. \quad (14)$$

类似地, P 偏振光与 S 偏振光的总反射系数为

$$R_p = \frac{S_{21p}}{S_{11p}}, \quad (15)$$

$$R_s = \frac{S_{21s}}{S_{11s}}. \quad (16)$$

其中 S_{21p} , S_{11p} , S_{21s} , S_{11s} 分别为使用相应偏振的费涅尔反射和透射系数计算出来的散射矩阵元. 由此得到三层膜系统, 反射式椭圆测量的基本公式:

$$\operatorname{tg} \psi \cdot e^{i\Delta} = R_p / R_s = \frac{S_{21p}}{S_{11p}} \cdot \frac{S_{11s}}{S_{21s}}. \quad (17)$$

若由实验测得 ψ 和 Δ , 就可以求出三层膜系统的光学参数.

值得注意的是, $\text{SnO}_2:\text{F}$ 绒面膜构成的三层膜系统包括两层界面膜, 其折射率 n_1, n_3 都不是独立参数。

第一层界面膜由 $\text{SnO}_2:\text{F}$ 和空气组成, 设其中 $\text{SnO}_2:\text{F}$ 所占比例为 f_{21} (空气比例为 $1-f_{21}$), 空气折射率为 n_0 , $\text{SnO}_2:\text{F}$ 折射率为 n_2 , 则 n_1 是 n_0, n_2, f_{21} 的函数, 根据有效介质近似理论^[2]:

$$f_{21} \frac{n_2^2 - n_1^2}{n_2^2 + 2n_1^2} + (1 - f_{21}) \frac{n_0^2 - n_1^2}{n_0^2 + 2n_1^2} = 0. \quad (18)$$

整理后得到 n_1^2 的方程式:

$$a(n_1^2)^2 + b(n_1^2) + c = 0, \quad (19)$$

其中

$$a = 2, \quad b = 3f_{21}n_0^2 - 3f_{21}n_2^2 + n_2^2 - 2n_0^2, \quad c = -n_0^2n_2^2,$$

第三层膜(界面膜)由 $\text{SnO}_2:\text{F}$ 和玻璃组成, 其中 $\text{SnO}_2:\text{F}$ 所占比例为 f_{23} (玻璃所占比例为 $1-f_{23}$) 玻璃折射率为 n_4 , 类似地得到此膜层折射率 n_3^2 的方程式:

$$a'(n_3^2)^2 + b'(n_3^2) + c' = 0. \quad (20)$$

其中:

$$a' = 2, \quad b' = 3f_{23}n_4^2 - 3f_{23}n_2^2 + n_2^2 - 2n_4^2, \quad c' = -n_4^2n_2^2.$$

3 测量与计算

由以上分析可知: $\text{SnO}_2:\text{F}$ 绒面膜的参数实质上是 $n_2, f_{21}, f_{23}, d_1, d_2, d_3$, 只有 n_2 依赖于波长。每次反射式椭圆测量, 只能给出两个参量 ψ 和 Δ , 提供两个方程, 为求出六个未知数, 必须通过增加测量次数来增加方程个数。这有两种途径: 一、固定入射波入, 改变入射角; 二、固定入射角, 改变入射波长^[3]。

利用途径一时, 需选三个不同入射角, 测得三组 ψ 和 Δ 值, 构成六个方程。利用途径二时, 因为 n_2 依赖于波长, 需选五个不同入射波长, 测得五组 ψ 和 Δ 值, 构成十个方程。入射角的选择应注意使 ψ 和 Δ 的变化都比较灵敏, 且不出现相关现象。

在获得实验数据之后, 利用模拟计算求出合适的 $n_1(f_{21}), n_2(\lambda), n_3(f_{23}), d_1, d_2, d_3$, 使计算得到的 ψ_i 和 Δ_i 与实验测得的 ψ_i 和 Δ_i 的差的平方和分别最小。其中 i 对应入射角或入射波长的编号。由以上分析可知无论采用哪种测量和计算方法, 都可求出 n_2 对波长的依赖关系。

以上的讨论是针对本文拟选用的三层膜模型进行的。若采用单层膜模型(忽略两个界面膜)或双层膜模型(只忽略 $\text{SnO}_2:\text{F}$ 与玻璃间的界面膜), 只需相应地减少测量次数, 简化计算公式即可。

4 结果与讨论

对采用常压化学气相沉积法制备的 $\text{SnO}_2:\text{F}$ 绒面膜的四个样品, 分别用上述两种方法测量与计算, 其结果基本一致。在入射波长 $\lambda = 632.8 \text{ nm}$ 时, 采用单层膜、双层膜、三层膜模型进行计算的结果均列入表 1。为了比较还列入用背散射法测得 $\text{SnO}_2:\text{F}$ 绒面膜的厚度。由表 1 可以看出:

Table 1 The thicknesses(nm) and the refractive indices n at $\lambda=632.8\text{nm}$ of $\text{SnO}_2:\text{F}$ films with chorionic surfaces

⑦	②							③					④		⑤
	n_1	n_2	n_3	d_1	d_2	d_3	$d=d_1+d_2+d_3$	n_1	n_2	d_1	d_2	$d=d_1+d_2$	n_2	d	d
No. 1	1.20	1.76	1.60	95.0	1035.0	65.0	1195.0	1.20	1.78	70.0	1160.0	1230.0	2.12	1140.0	1219.3
No. 2	1.20	1.81	1.62	85.0	1045.0	75.0	1205.0	1.20	1.82	70.0	1170.0	1240.0	1.28	1186.0	1219.3
No. 3	1.22	1.81	1.62	70.0	630.0	70.0	770.0	1.20	1.78	60.0	790.0	850.0	2.15	800.0	787.4
No. 4	1.22	1.80	1.62	60.0	660.0	60.0	780.0	1.20	1.80	50.0	790.0	840.0	1.30	780.0	808.8

① calculation method ② trilayered film model ③ bilayered film model ④ single-layer film model
 ⑤ backscattering method ⑥ parameters ⑦ number of samples

1) 用单层膜模型得到的 n_2 , 对不同的样品, 相差甚大, 可以认为数据是错误的; 而得到的膜厚与背散射法给出的结果比较, 有的样品偏大, 有的样品偏小, 没有一定的规律性.

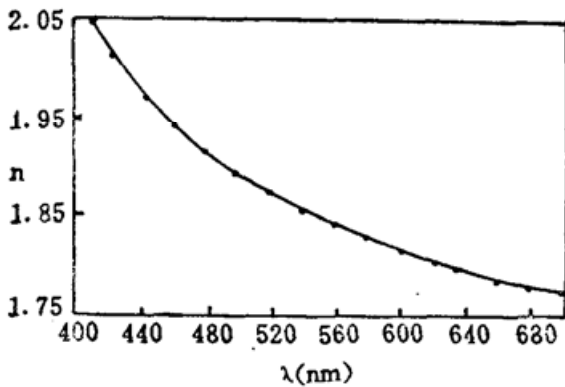


Fig. 1 Refractive index n_2 of sample 1 as a function of wavelength λ

2) 采用双层膜模型得到的 n_2 , 对不同的样品相差不大, 数据是可信的; 得到的膜厚与背散射法给出的结果比较, 对所有样品都偏大, 且膜层愈薄, 精度愈差.

3) 采用三层膜模型得到的 n_2 , 对不同的样品相差不大, 是可信的; 所得到的膜厚与背散射法给出的结果比较, 都很接近, 且都偏小.

4) 各样品的界面膜厚度 d_1 和 d_3 以 4 号样品为最少, 由此可推知 4 号样品的颗粒最小. 这与各样品的扫描电镜形貌图的结果一致.

此外当对同一样品, 利用不同入射波长测得的实验数据, 采用三层膜模型, 通过模拟计算求得不同波长下的膜厚完全相同, 且精度很高.

图 1 是 $\text{SnO}_2:\text{F}$ 膜的折射率 n_2 随波长的变化关系. 由图可知 $\text{SnO}_2:\text{F}$ 膜在可见光区属正常色散.

5 结 论

由以上结果和讨论, 可得出以下结论:

1) 两种媒质的交界处有界面膜存在, 其厚度随媒质表面的粗糙度增大而增大. 对非镜面的 $\text{SnO}_2:\text{F}$ 绒面膜, 在反射椭偏术中, 不能采用单层膜模型计算.

2) $\text{SnO}_2:\text{F}$ 绒面膜的三层透明膜模型符合实际, 在反射椭偏术中, 用此模型计算得到正确结果.

3) 反射式椭偏光谱法, 是同时测定非镜面膜的膜厚和色散关系精确而有效的方法.

山东大学物理系谭春雨副教授对背散射法测膜厚给予的帮助,作者在此表示感谢。

参 考 文 献

- [1] R. M. A. Azzam, N. M. Bashara, *Ellipsometry and polarized light*, Amsterdam; North-Holland publishing company, 1977: 332~340
- [2] D. E. Aspnes, J. B. Theeten, Investigation of effective-medium models of microscopic surface roughness by spectroscopic ellipsometry. *Phys. Rev., B*, 1979, 20 (8): 3292~3302
- [3] 张淑芝, 魏爱俭, 邵秀娥等. 用消光式椭圆偏振光谱法测量掺钇 a-Si:H 膜的光学性质. *红外研究*, 1988, 7A (4): 301~306

Ellipsometry study on the non-mirror surface films

ZHANG SHUZHI WANG ZHIGANG

(Department of Optics, Shandong University, Jinan 250100)

LI SHUYING

(Institute of Optoelectronic Material and Devices, Shandong University, Jinan 250100)

(Received 24 July 1991; revised 6 January 1992)

Abstract

The three-layer-film model for $\text{SnO}_2:\text{F}$ film with chorionic surfaces is suggested. Using the matrix of interface and the layer matrix representing the properties of propagation of plane waves, we have deduced the scattering matrix and the overall reflection coefficient of the three-layer structure and obtained the basic formula of the reflection ellipsometry. The dispersion relation and thickness of $\text{SnO}_2:\text{F}$ films with chorionic surfaces have been measured by using the spectroscopic reflection ellipsometry.

Key words $\text{SnO}_2:\text{F}$ film with chorionic surface, interface film, scattering matrix, spectroscopic ellipsometry.