

用光学透射谱分析薄膜光学参量的一种简易方法*

赵强, 王基庆, 柴志方

(华东师范大学, 上海 200241)

摘要: 基于经典的色散理论建立的单振子光谱分析模型, 通过理论推导, 借助计算机辅助处理, 提出了一种比较简捷直观的只利用垂直透射光谱对薄膜光谱进行分析的方法. 利用这种方法分析了直流溅射制备的 ZnO 薄膜的透射光谱, 计算出了薄膜在透明振荡区的折射率色散关系以及厚度等参量, 并对分析方法给出了验证.

关键词: 单振子模型; 光谱分析; 薄膜

中图分类号: O482.3

文献标识码: A

文章编号: 1004-4213(2009)08-2046-4

0 引言

在对薄膜材料的研究中, 光谱分析是一种常用的重要研究手段, 利用光谱分析的方法可以获取薄膜材料的许多有价值的信息. 如何获得薄膜的厚度和薄膜的折射率色散关系是比较重要的环节之一. 鉴于薄膜的垂直透射光谱是通常比较容易获得的基本测试数据. 对于一般性的分析, 从效率成本的角度考虑, 建立一种快速有效的通过分析薄膜的垂直透射谱来获取薄膜的厚度和光学折射率等参量的方法, 对薄膜材料的研究来说, 颇具现实意义. R. Swanepoel 等对采用绘制包络线的方法分析薄膜的透射光谱, 计算出薄膜的厚度和折射率等光学参量进行了较为详细的讨论^[1]. 然而, 绘制包络线的过程比较烦琐, 绘制过程中的主观因素对分析结果具有比较大的影响. 通常为了绘制包络线的精确, 需要光谱中有较多的干涉极值, 对于相对较薄的薄膜就会显得有点能力不足. 基于经典电动力学的单振子模型被证明是一种有效的分析材料光学特性的方法^[2-4], 鉴于此, 本文提出了一种更为方便和简捷的利用垂直透射光谱分析薄膜厚度和折射率的方法, 并对其进行了应用验证.

1 理论与方法的建立

1.1 单振子模型简述

用经典电动力学描述入射光与物质中的原子相互作用时, 可以用 Lorentz 建立的唯像理论来解释^[3-4]. 在这个理论中, 把原子看作一个由带正电的离子实与带负电的电子组成的振子, 因此固体可以被看成是一组振子的集合体, 这些振子在入射电磁

辐射场的作用下作强迫振动, 发出次波, 且彼此相互干涉产生了反射波和折射波. 通过理论推导可以得出, 非磁性材料的折射率色散服从

$$n = \sqrt{1 + E_d E_0 / (E_0^2 - E^2)} \quad (1)$$

式中, 有效振子的平均能量 $E_0 = hc/\lambda_0$, ω_0 和 λ_0 为相应的中心频率和波长. $E_d = F/E_0$ 被称为色散能, F 是与所有策动力有关的量. 入射光子的能量 $E = hc/\lambda$, ω 和 λ 为相应的频率和波长.

式(1)进一步可以简化为

$$\begin{cases} y = A + Bx \\ y = 1/(n^2 - 1), x = 1/\lambda^2 \\ A = E_0/E_d, B = -(hc)^2/(E_d E_0) \end{cases} \quad (2)$$

式中 h 是普朗克常数, c 是真空中光速. 因此, 通过绘制直线 $y = A + Bx$, 外推得出 A 与 B , 即可得到 n 随入射光子能量 E 的色散关系, 以及 E_d 和 E_0 .

此外, 为了方便参考其他文献, 式(1)还有另外一种表述

$$n = \sqrt{1 + S_0 \lambda_0^2 / [1 - (\lambda_0/\lambda)^2]} \quad (3)$$

式中 $S_0 = E_d E_0 / (hc)^2$, 此时, 式(2)

$$\begin{cases} A = 1/S_0 \lambda_0^2 \\ B = -1/S_0 \end{cases} \quad (4)$$

1.2 用于分析的模型和方法

用于分析的单层膜系的结构如图 1, 测试光线为垂直入射. 假设外界为标准状况下的空气, 折射率为 $n_0 = 1$. 薄膜的厚度是 d , 折射率为 n , 消光系数为 k . 衬底的上下抛光面平行, 折射率为 n_s , 且厚度远远大于入射光的波长, 故而衬底对光的干涉可以忽略.

一般情况下, 用于分析的光谱范围均选择在衬底吸收可以忽略的波段, 此时, 衬底的透射率

$$T_s = 2n_s / (1 + n_s^2) \quad (5)$$

可以得出

$$n_s = \frac{1}{T_s} + \sqrt{\frac{1}{T_s^2} - 1} \quad (6)$$

* 上海高校选拔培养优秀青年教师科研基金(79001304)资助
Tel: 021-54344076 Email: zhaoqiang@phy.ecnu.edu.cn
收稿日期: 2008-05-30 修回日期: 2008-09-09

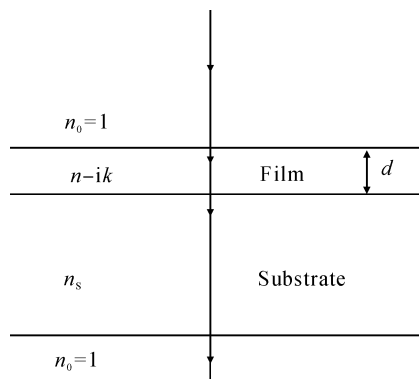


图1 用于分析的膜系结构

Fig.1 System of the thin film being analyzed

对于透明和吸收很弱的情况,透射率主要由 n 决定,

$$T = \frac{8n^2 n_s}{(1+n^2)(n^2+n_s^2)+4n^2 n_s+(1-n^2)(n^2-n_s^2)\cos 2\delta} \quad (7)$$

式中 $\delta = (2\pi/\lambda)nd$, 当

$$4nd = m\lambda_m, (m=1, 2, 3, \dots) \quad (8)$$

时,透射谱出现极值, m 为干涉极次. 根据 m 取值的奇偶不同,透射率极值

$$\begin{cases} T_{\text{even}} = \frac{2n}{1+n_s^2} & (m=2, 4, 6, \dots) \\ T_{\text{odd}} = \frac{4n^2 n_s}{(1+n^2)(n^2+n_s^2)} & (m=1, 3, 5, \dots) \end{cases} \quad (9)$$

当 $n < n_s$ 时, T 在 T_s 的上面, 当 $n > n_s$ 时, T 在 T_s 的下面. 由此, 可以根据样品和裸衬底的透射谱线的相对位置来判断薄膜的折射率相较于衬底的大小.

一般情况下, 随着波长的增大, 折射率色散减小, 可以采用文献[5]所述的外推法估算出干涉极次 m , 也可以由 $(m+1)\lambda_{m+1} \approx m\lambda_m$ 来估算. 得到 m 值后, 由式(9)中的 T_{even} 可以估算出相应极值处的 n 值, 进而由式(8)估算出膜厚 d . 因此, 在分析光谱时, 通常在波长相对较长的波段选择 T_{even} 与 T_s 重合的区域, 采用上述步骤, 粗略地确定出膜厚 d . 然后, 根据式(8)就可以得到一个随 m 变化的 $n \sim \lambda_m$ 色散散点. 由于 d 值存在一定的偏差, 在式(2)给出的 $x-y$ 坐标系中, 这些散点也不能较好地满足方程所述的直线关系, 所以得在一定范围内调整 d 值, 使得 $n \sim \lambda_m$ 的关系与 $y = A + Bx$ 直线方程能够较好地重合, 然而, 这是一个比较繁琐的计算与拟合过程. 此时, 借助于计算机编程来进行计算和分析, 问题就会显得比较简单. 首先, 计算出 d 的初始估计值, 根据式(8)可以计算出 $n \sim \lambda_m$ 色散散点, 然后将这些散点绘制在式(2)给出的 $x-y$ 坐标系中. 当改变 d 值时, 散点的位置也会发生变化, 考虑到在材料的吸收边附近区域, 材料的吸收对透射光谱的干涉极值位置

具有明显的影响, 故而要以长波长区域的散点作为主要判断和拟合依据. 找出这些散点能够符合的式(2)给出的直线方程的最佳状态, 此时的 d 值就是拟合出的比较精确的膜厚值. 再根据所得的直线拟合方程, 可以得出折射率 n 随波长的色散关系, 以及 E_d 和 E_0 等参量的值.

从分析过程中不难看出, 用于估算膜厚 d 的极值处的折射率 n_m 的估算仍然显得比较复杂. 很幸运, 可以通过查阅资料等方式估计出折射率的粗略值及范围, 进而粗估出 d 值. 这一过程的粗略程度对后续的计算机辅助拟合计算的精度没有任何影响. 本文中计算程序采用 C++ Builder 编写, 运行时的界面如图 2.

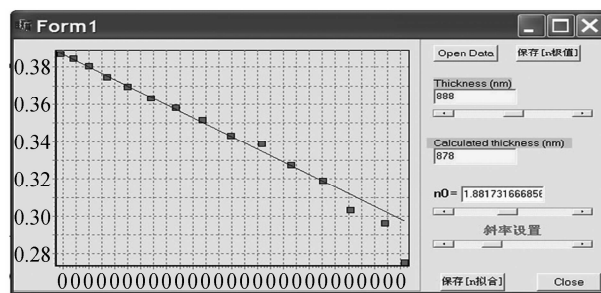


图2 分析程序的界面

Fig.2 Interface of the program

2 实例分析

用于分析的样品是在 JGS2 石英衬底上直流溅射的 ZnO 薄膜. 石英裸衬底的垂直透射光谱图如图 3 中的 T_s , 下方是在一面直流溅射 ZnO 薄膜后的垂直透射光谱. 结果表明薄膜的折射率大于衬底的折射率. 极值点的参量由表 1 给出. 当波长大于 600 nm 时, 样品的透射谱的极大值和裸衬底的透射谱线重合, 表明薄膜在此区域不存在明显的吸收.

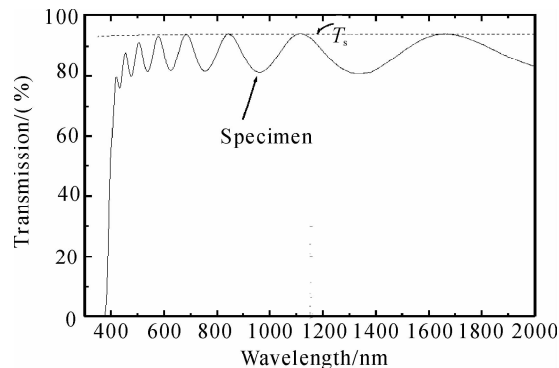


图3 透射光谱

Fig.3 Transmission spectrum

表1 样品的光谱中的极值点的参量

| | | | | | | | | |
|---------------------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|
| λ/nm | 1662 | 1333 | 1115 | 961 | 845 | 756 | 684 | 626 |
| m | 4 | 5 | 6 | 7 | 8 | 9 | 10 | 11 |
| T/% | 93.86 | 80.72 | 93.82 | 81.22 | 93.77 | 81.54 | 93.75 | 81.87 |
| λ/nm | 579 | 537 | 505 | 476 | 455 | 432 | 420 | / |
| m | 12 | 13 | 14 | 15 | 16 | 17 | 18 | / |
| T/% | 93.05 | 81.42 | 91.18 | 79.85 | 87.82 | 76.01 | 79.66 | / |

采用本文前面所述的方法进行了计算机辅助分析,在选取极值点并估计出干涉级次和 d 值后,拟合出的由式(2)所描述的直线由图4给出图中的散点对应极值点.从图4可以看出,当波长大于475 nm时,折射率能够比较好地遵从单振子模型.拟合计算得出的各参量的值由表2给出. $n \sim \lambda$ 色散见图5.

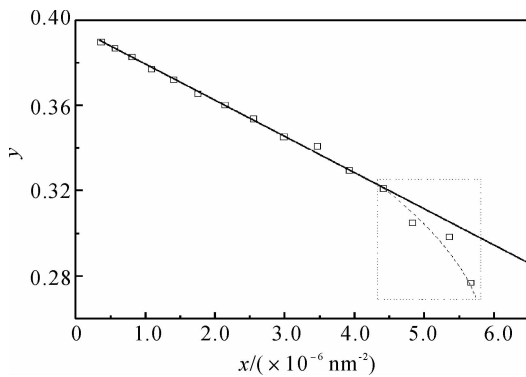
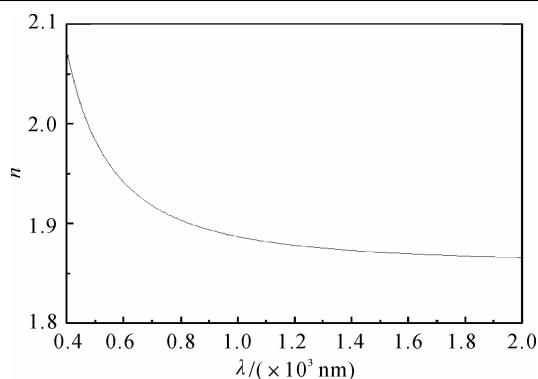


图4 样品光谱的拟合分析

Fig. 4 Fit analysis of the spectrum

表2 拟合计算出的各参量的值

| 膜厚/nm | A | B | E_0/eV | E_d/eV | λ_0/nm |
|-------|---------|---------|-----------------|-----------------|-----------------------|
| 878 | 0.407 3 | -166 26 | 6.135 9 | 15.064 9 | 202 |

图5 计算得出的 $n \sim \lambda$ 色散Fig. 5 Calculated $n \sim \lambda$ dispersion

拟合计算出的薄膜厚度与扫描电子显微镜(SEM)薄膜断面观测的结果吻合.在波长小于475 nm的区域,随着波长的减小, y 值(由图5中虚线给出)向下偏离直线加剧,这一行为可能归因于吸收无法忽略导致的结果^[3]. E_0 和 E_d 的值均小于单晶 ZnO 块体的值 6.4 和 17.1,这可能与薄膜中的缺陷以及载流子浓度有关^[6],在此不做过多讨论.

3 结论

借助单振子色散模型和计算机辅助处理,可以建立一种比较简捷且只利用垂直透射光谱对透明(或吸收较弱)的薄膜进行光学分析的方法.在本文中,通过分析直流溅射制备的 ZnO 薄膜实例,验证了这一方法的可行性.

参考文献

- [1] SWANEPOEL R. Determination of the thickness and optical constants of amorphous silicon [J]. *J Phys E: Sci Instrum*, 1983, **16**: 1214-1222.
- [2] SU Wei-tao, LI Bin, LIU Ding-quan, *et al*, The fitting of optical constants of infrared coating materials and application in broadband antireflection coatings [J]. *Acta Photonica Sinica*, 2008, **37**(3): 490-493.
苏伟涛,李斌,刘定权,等.红外光学薄膜材料光学常量计算和在宽带增透膜中的应用[J].光子学报,2008, **37**(3): 490-493.
- [3] WEMPLE S H AND DIDOMENICO M, Optical dispersion and the structure of solids [J]. *Phys Rev Letters*, 1969, **23**: 1156-1160.
- [4] WEMPLE S H AND DIDOMENICO M, Behavior of the electronic dielectric constant in covalent and ionic Materials [J]. *Phys Rev B*, 1971, **3**: 1338-1350.
- [5] TIAN Min-bo, LIU De-ling. Hand book of thin film science and technology [M]. Beijing: *China Machine Press*, 1991: 107.
田民波,刘德令.薄膜科学与技术手册[M].北京:机械工业出版社,1991: 107.
- [6] WEMPLE S H. Refractive-index behavior of amorphous semiconductors and glasses [J]. *Phys Rev B*, 1971, **7**: 3767-3777.

A Simple Method of Deducing the Optical Constants of Thin Films Using the Optical Transmission Spectrum

ZHAO Qiang, WANG Ji-qing, CHAI Zhi-fang
(East China Normal University, Shanghai 200241, China)

Abstract: According to the single oscillator expression, based on a based on classic electromagnetic dispersion model, a simple and efficient computer program aided method for deducing the optical refractive index and thickness of a thin film from the normal-incident transmission spectrum was proposed. A dc sputtered ZnO film was analyzed using the method, The results demonstrated that the method is practicable.

Key words: Single oscillator expression; Optical spectrum analysis; Thin film



ZHAO Qiang obtained his Ph. D. degree in 2000. Now he is an associate professor at Department of Physics, East China Normal University. His research interests focus on photo-electronic thin films and devices.