

ĐÁNH GIÁ ĐỘ DÀY CỦA MÀNG MỎNG KHÔNG HẤP THỤ TRÊN NỀN HẤP THỤ TỪ PHÉP ĐO PHẢN XẠ TRONG HAI MÔI TRƯỜNG.

Nguyễn Thị Bảo Ngọc, Nguyễn Văn Nhã

Khoa Vật lý Đại học Sư phạm

DHQGHN

Việc xác định độ dày và phổ chiết suất của màng mỏng không hấp thụ trên nền hấp thụ nhờ phép đo phản xạ trong hai môi trường không hấp thụ khác nhau là đặc biệt phù hợp với các màng mỏng có độ dày cỡ vài chục nanômét.

Bài báo này sẽ trình bày một qui trình mới chọn biểu thức đúng để nhận được độ dày của màng mỏng từ các số liệu thực nghiệm. Đồng thời áp dụng để xác định độ dày của màng mỏng oxyt trên nền IgCdTe (MCT) nhờ phép đo phản xạ trong không khí và nước cất.

I. MỞ ĐẦU

Có nhiều phương pháp để phân tích đặc trưng quang học của các màng mỏng không hấp thụ [1] đặc biệt là với màng không hấp thụ trên nền hấp thụ. Phương pháp "nhúng chìm phản xạ" (ISR) thường được sử dụng để phân tích các màng tương đối dày. Trong phương pháp ISR, phổ phản xạ được đo trong các môi trường không hấp thụ khác nhau. Ellis và cộng sự [2] đã chỉ ra là có thể dùng phương pháp ISR để xác định độ dày và phổ chiết suất, nhưng phương pháp này chỉ có hiệu lực với các màng mà trong phổ phản xạ có xuất hiện các cực trị. I.Ohlidal và K.Navratal [3] đã trình bày phương pháp ISR mới. Các tác giả đã chỉ ra là có thể xác định độ dày và chiết suất nhờ phép đo phổ phản xạ của hệ chỉ trong hai môi trường không hấp thụ khác nhau. Ý nghĩa chủ yếu của phương pháp là ở chỗ có thể xác định độ dày và chiết suất của màng mỏng nhờ việc lấy trung bình từ các biểu thức tương minh. Thứ hai là, có thể áp dụng cho các màng có độ dày tương đối nhỏ. Các tác giả đã sử dụng phương pháp này để đánh giá độ dày và phổ chiết suất của màng SiO₂ trên nền Si đơn tinh thể.

Bài báo này sẽ đưa ra một qui trình mới chọn biểu thức đúng để nhận được độ dày của màng mỏng từ các số liệu thực nghiệm. Đồng thời sử dụng vào việc đánh giá độ dày của các màng mỏng oxyt trên nền MCT nhờ phép đo phản xạ trong không khí và nước cất.

II. LÝ THUYẾT VÀ NGUYÊN TÁC CỦA PHƯƠNG PHÁP.

Hệ được khảo sát gồm: Màng mỏng không hấp thụ trên nền hấp thụ với, các giả thiết là các vật liệu tạo nên hệ là đồng nhất và đẳng hướng về phương diện quang học; không tồn tại lớp chuyển tiếp giữa các biến của hệ; môi trường là không hấp thụ và được đặc trưng bởi chiết suất thực n.

Khi chiếu chùm ánh sáng đơn sắc song song lên màng từ phía môi trường hệ số phản xạ R của hệ được xác định bằng biểu thức:

$$R = \hat{R} \hat{R}^* \quad (1)$$

$$\text{Với : } \hat{R} = \frac{\hat{r}_1 + \hat{r}_2 \exp(i\chi_1)}{1 + \hat{r}_1 \hat{r}_2 \exp(i\chi_1)} \quad (2)$$

$$x_1 = \frac{4n_0 d_1 \pi}{\lambda}; r_1 = \frac{n_0 - n_1}{n_0 + n_1}; \hat{r}_2 = \frac{n_1 - \hat{n}}{n_1 + \hat{n}} = \left| \begin{array}{l} r_2 \\ \exp(i\delta_2) \end{array} \right|$$

$$\hat{n} = n + ik$$

Ở đây n_0, n_1 và n tương ứng là chiết suất của môi trường, màng mỏng và nền; k là hệ số hấp thụ của nền; d_1 là độ dày của màng mỏng và λ là bước sóng ánh sáng tới; R là hệ số Frénel của hệ, R^* là liê hợp phức của \hat{R}

Trong phương pháp ISR mới, các biểu thức xác định phổ chiết suất là :

$$n_1 = \left\{ n_0 \frac{n_0(n(A-B) - (n^2 + k^2)C)}{n_0 C - n(A+B)} \right\}^{1/2} \quad (3)$$

Với :

$$A = (n_0^2 - n'^2_0) \{1 + R(n_0)\} \{1 - R(n'_0)\}$$

$$B = (n'_0 - n_0)^2 \{1 - R(n_0)R(n'_0)\} + (n'_0 - n_0)^2 \{R(n_0) - R(n'_0)\}$$

$$C = (n_0 - n'_0)^2 \{1 - R(n_0)\} \{1 - R(n'_0)\}$$

Và n'_0 là chiết suất của môi trường thứ hai trong đó thực hiện phép do phản xạ của hệ. $R(n_0)$ và $R(n'_0)$ tương ứng là phổ phản xạ của hệ trong các môi trường có chiết suất n_0 và n'_0 .

Có thể sử dụng (3) để xác định n_1 với tất cả các bước sóng mà trong đó $n_0, n'_0, n, k, R(n_0)$ và (n'_0) đã được đo.

Độ dày d_1 có thể được đánh giá từ phép do phản xạ của hệ trong hai môi trường từ các biểu thức dưới đây :

$$d_1 = \frac{\lambda}{4\pi n_1} (-\delta_2 + \arccos l) + \frac{h\lambda}{2n_1} \quad (4)$$

$$\text{Và : } d_1' = \frac{\lambda}{4\pi n_1} (-\delta_2 - \arccos l) + \frac{h\lambda}{2n_1} \quad (5)$$

Ở đây $h, l = 0, \pm 1, \pm 2, \pm 3 \dots$

$$L = \frac{R(n_0) \left(1 + r_1^2 \left| \begin{array}{l} \hat{r}_2 \\ \exp(i\delta_2) \end{array} \right|^2 - (r_1^2 + \left| \begin{array}{l} \hat{r}_2 \\ \exp(i\delta_2) \end{array} \right|^2) \right)}{2r_1 \left| \begin{array}{l} \hat{r}_2 \\ \exp(i\delta_2) \end{array} \right| \{1 - R(n_0)\}}$$

$$\operatorname{tg} \delta_2 = - \frac{2kn_1}{n_1^2 - n^2 - k^2}$$

Giá trị d_1 được tính từ cả hai biểu thức (4) và (5) với tất cả các bước sóng mà trong đó n_1 đã được xác định. Tuy nhiên biểu thức đúng sẽ cho kết quả d_1 không phụ thuộc vào bước sóng. Biểu thức (4) và (5) đã được sử dụng để xác định độ dày của màng SiO_2/Si . Sau đó bằng cách so sánh độ lệch chuẩn để tìm ra biểu thức đúng cho $d_1[3]$. Ngoài ra (4) và (5) là không dùng được với các bước sóng thỏa mãn phương trình $2n_1d_1 = \lambda$.

Dưới đây sẽ chỉ ra qui trình khác cho phép chọn biểu thức đúng để đánh giá độ dày d_1 của màng mỏng.

Trước hết khảo sát số hạng ($-\delta_2 \pm \arccos L$) trong các biểu thức (4) và (5). Nhờ biểu thức $x_1 = 4\pi n_1 d_1 / \lambda$ suy ra là :

$$\cos(x_1 + \delta_2) = L \quad (6)$$

Vì δ_2 là độ lệch pha xuất hiện khi phản xạ từ môi trường chiết quang hơn, $\operatorname{tg} \delta_2$ dương và δ_2 nằm trong khoảng $(-\pi; -\pi/2)$ suy ra

$$\begin{aligned} x_1 + \delta_2 &= \arccos L + 2k\pi \\ x &= -\delta_2 \pm \arccos L + 2k\pi \end{aligned} \quad (7)$$

Khi chuyển dịch về phía sóng ngắn, với màng mỏng đã cho, x_1 tăng.

a) Khi x_1 rất nhỏ : $x_1 + \delta_2$ nhận các giá trị trong khoảng $(-\pi; -\pi/2)$ và biểu thức đúng là :

$$x_1 + \delta_2 = -\arccos L \quad (8)$$

b) Khi x_1 bắt đầu tăng ($x_1 \sim \pi/2$) ; $-\pi/2 < x_1 + \delta_2 < 0$. Lúc này $\cos(x_1 + \delta_2) > 0$, tức là L dương nhỏ, $\arccos L$ nhỏ, $\arccos L$ nhỏ hơn $\pi/2$.

$$x_1 + \delta_2 = -\arccos L \quad (9)$$

c) Khi $0 < x_1 + \delta_2 < \pi/2$ thì $\cos(x_1 + \delta_2) = L > 0$, $\arccos L$ nằm trong khoảng $(0, \pi/2)$:

$$x_1 + \delta_2 = +\arccos L \quad (10)$$

Sự đổi dấu của hàm \arccos xuất hiện cho đến khi x_1 đạt giá trị π tức là $2n_1 d_1 = \lambda/2$, nơi có cực tiểu của nhiễu xạ.

d) x_1 tiếp tục tăng, trong khoảng $\pi/2 < x_1 + \delta_2 < \pi$,

$\cos(x_1 + \delta_2) = L < 0$, $\arccos L$ nằm trong khoảng $(\pi/2, \pi)$ và :

$$x_1 + \delta_2 = +\arccos L \quad (11)$$

e) Khi $\pi < x_1 + \delta_2 < 3\pi/2$ thì $\cos(x_1 + \delta_2) = L < 0$, $\arccos L$ nhận giá trị trong khoảng $(\pi/2, \pi)$ và :

$$x_1 + \delta_2 = -\arccos L + 2\pi \quad (12)$$

Tức là khi $x_1 \geq 2\pi$, lúc đó $2n_1 d_1 \approx \lambda$, tại chỗ có cực đại nhiễu xạ...

Như vậy theo chiều giảm của bước sóng, biểu thức đúng trước hết là :

$$x_1 = -\delta_2 - \arccos L \quad (h=0) \quad ; \lambda > 4n_1 d_1$$

Sau đó $x_1 = -\delta_2 - \arccos L \quad (h=0)$; bắt đầu khi $\lambda/2 = 2n_1 d_1$. Tức là tại cực tiểu của nhiễu xạ.

$x_1 = -\delta_2 - \arccos L \quad (h=1)$; bắt đầu khi $\lambda = 2n_1 d_1$. Tức là tại cực đại của nhiễu xạ.

Từ đó có thể rút ra qui trình đánh giá độ dày d_1 của màng mỏng như sau :

1- Trước hết sử dụng biểu thức đúng (5) :

$$d_1^+ = \frac{\lambda}{4\pi n_1} (-\delta_2 - \arccos L) + \frac{l\lambda}{2n_1} \quad \text{với } l=0 \quad (13)$$

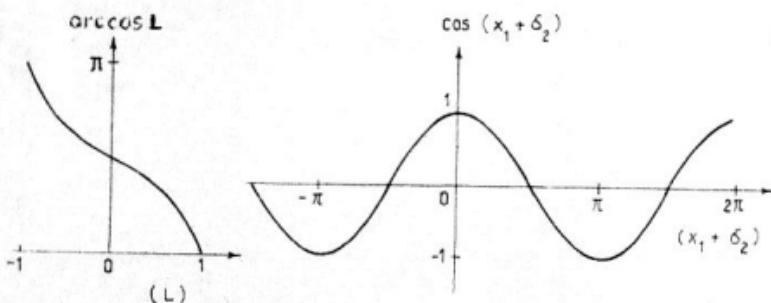
2- Ở gần cực tiểu, sử dụng biểu thức (4):

$$d_1^+ = \frac{\lambda}{4\pi n_1} (-\delta_2 + \arccos L) + \frac{h\lambda}{2n_1} \quad \text{với } h=0 \quad (14)$$

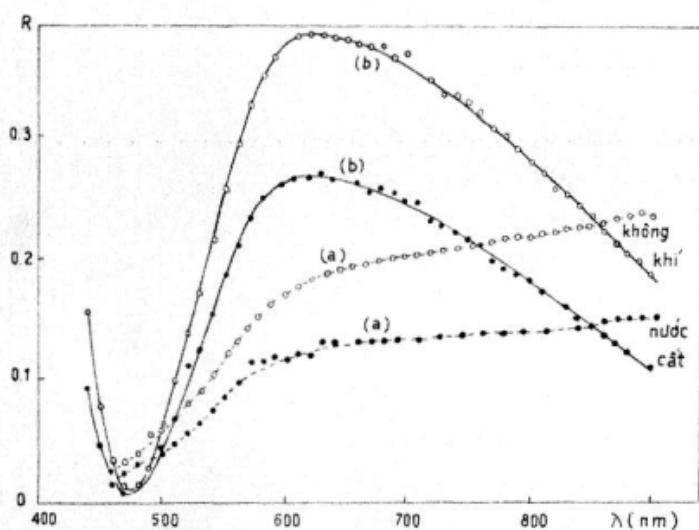
3- Ở gần cực đại, lại sử dụng biểu thức (5):

$$d_1^+ = \frac{\lambda}{4\pi n_1} (-\delta_2 - \arccos L) + \frac{l\lambda}{2n_1} \quad \text{với } l=1 \quad (15)$$

4- v..v..



Hình 1 - Sự biến đổi của hàm $\arccos L$ và $\cos(x_1 + \delta_2)$



Hình 2: Phổ phân xạ của các màng mỏng số 1(a) và số 2(b) trong không khí và nước cắt

KẾT QUẢ THỰC NGHIỆM

Độ dày của các lớp oxyt được chế tạo bằng phương pháp anot [4,5] và phương pháp hóa [5,6] trên nền MCT được tạo bằng phương pháp Bridgman [7], đã được tính nhờ phép do hệ số phản xạ trong phạm vi $\lambda = 400 \pm 900\text{nm}$ trong không khí và nước cất. Chiết suất của không khí được chọn $n_0 = 1$; sự phụ thuộc tần số của chiết suất nước cất được bỏ qua và chọn $n'_0 = 1,33$. Chiết suất n và hệ số hấp thụ k của nền MCT được tính từ sự phụ thuộc phổ của phần thực và phần ảo của hàng số điện môi theo Vina và cộng sự [8] nhờ công thức :

$$\varepsilon_1 = n^2 - k^2 \text{ và } \varepsilon_2 = 2nk.$$

Trên hình 2 là các kết quả do phản xạ trong không khí $R(n_0)$ và nước cất $R(n'_0)$ với 2 mẫu có độ dày khác nhau. Bảng 1,2 là các giá trị do và tính toán được cho n_1 và d_1 với 2 mẫu đó.

Với mẫu 1 mỏng hơn, không quan sát thấy bất kỳ cực trị nào trong phạm vi phổ từ 460 đến 900nm. Trong toàn phổ, biểu thức đúng là (13) với $I = 0$. Độ dày của màng oxyt là $d_1 = (33,9 \pm 1,3)$ nm (bảng 1).

Với mẫu số 2 dày hơn, từ hình 2b thấy có một cực trị tại bước sóng $\lambda = 470\text{nm}$ và cực đại $\lambda_{\max} = 620\text{nm}$. Dịch chuyển từ phía sóng dài về phía sóng ngắn. Trong phạm vi giữa 900 và 620nm biểu thức đúng là (14) với $h = 0$; phạm vi bước sóng thỏa mãn biểu thức $2n_1d_1 = m\lambda$ các biểu thức (4) và (5) không có giá trị; di khỏi cực đại, trong phạm vi 600 đến 500nm biểu thức có hiệu lực là (15) với $I = 1$. Từ $\lambda = 480\text{nm}$ trong vùng cực tiểu của nhiễu xạ lại bắt đầu áp dụng (14) với $h = 1$. Độ dày của màng oxyt số 2 ngoài vùng 600-700 nm là $d_1 = (148,2 \pm 3,9)$ nm.

Với mẫu số 2 có thể xác định độ dày từ vị trí của các cực trị của phổ. Chẳng hạn ở đây, khi chọn giá trị chiết suất tương ứng $n_1(620\text{nm}) = 2,16$ và $n_1(470\text{nm}) = 2,25$, nhận được giá trị trung bình của màng mỏng này là $d_1 = 150,1$ nm, phù hợp với giá trị nhận được từ phương pháp trên.

Bảng 1 : Màng mỏng số 1

$\lambda(n_0)$	$\alpha(N_0)$	$\alpha(n'_0)$	Φ	$d_{\text{ox}}(h=0)$ (nm)	$d''_{\text{ox}}(I=0)$ (nm)
400	0,027	0,020	2,27	43,28	31,25
480	0,039	0,027	2,25	47,88	31,88
500	0,058	0,041	2,22	53,47	32,01
520	0,080	0,056	2,22	58,49	31,57
540	0,104	0,075	2,21	64,40	31,79
560	0,130	0,094	2,15	74,30	33,59
580	0,155	0,107	2,14	82,40	33,33
600	0,169	0,115	2,12	89,34	33,99
620	0,182	0,121	2,12	95,27	33,44
640	0,189	0,125	2,10	101,67	34,00
660	0,194	0,127	2,09	107,51	34,37
680	0,198	0,130	2,06	113,92	35,19
700	0,202	0,131	2,07	117,95	35,06
720	0,206	0,133	2,06	123,37	35,19
740	0,208	0,136	2,07	127,11	35,20
760	0,214	0,136	2,08	133,55	34,34
780	0,217	0,138	2,06	137,90	34,75
800	0,220	0,142	2,05	144,10	35,89
820	0,224	0,142	2,06	148,12	34,57
840	0,226	0,143	2,07	151,49	34,78
860	0,229	0,145	2,07	156,55	35,03
880	0,232	0,147	2,07	161,09	35,11
900	0,235	0,149	2,07	165,65	35,13

Bảng 2 : Màng mỏng số 2

$\lambda(n_0)$	$\alpha(N_0)$	$\alpha(n'_0)$	Ph	$d_{ox}(h=0)$ (nm)	$d_{ox}(I=0)$ (nm)	$d_{ox}(h=1)$ (nm)	$d_{ox}(I=1)$ (nm)
440	0,148	0,102	2,28	50,40	19,13	147,02	115,75
460	0,034	0,025	2,26	44,46	30,48	146,09	112,11
480	0,013	0,008	2,29	42,33	35,58	147,26	140,52
500	0,058	0,043	2,20	54,70	32,50	168,58	146,36
520	0,138	0,097	2,17	66,11	27,17	185,80	146,83
540	0,216	0,152	2,18	76,11	22,87	200,20	146,25
560	0,297	0,209	2,18	90,03	15,53	218,08	143,58
580	0,350	0,248	2,10	111,10	7,22	249,09	145,20
600	0,371	0,268	0,68	418,94	6,42	858,24	445,72
620	0,378	0,270	4,09	72,25	35,58	148,02	111,36
640	0,376	0,268	4,39	62,24	33,77	135,03	106,57
660	0,371	0,262	3,27	77,74	8,20	178,67	92,72
680	0,363	0,254	3,09	90,64	9,28	200,46	100,54
700	0,352	0,244	3,84	87,86	42,49	178,98	133,62
720	0,341	0,233	3,03	93,76	3,62	212,65	115,27
740	0,329	0,222	2,13	158,41	1,78	331,70	171,50
760	0,314	0,209	2,20	149,46	5,94	322,25	178,86
780	0,296	0,194	2,23	145,54	12,18	319,10	186,75
800	0,276	0,179	2,12	152,37	19,54	341,32	208,49
820	0,264	0,168	2,25	152,50	21,75	324,99	204,23
840	0,244	0,115	2,11	152,66	29,62	352,02	228,98
860	0,221	0,139	2,08	153,46	36,78	360,33	243,63
880	0,200	0,124	2,08	152,13	42,70	363,43	254,00
900	0,177	0,109	2,08	151,97	49,38	370,00	267,42

$R(n_0)$ và $R(n'_0)$: Phổ xạ của màng mỏng do được đối với chuẩn silic trong không khí và nước cất tương ứng.

IV. KẾT LUẬN

Việc xác định độ dày màng mỏng theo qui trình trên cho phép đánh giá nhanh và chính xác hơn so với cách đánh giá ở [4], đặc biệt với màng mỏng có độ dày cỡ vài chục nanomet mà trong phổ phản xạ không có cực trị nào cả. Sai số nhận được từ qui trình này không lớn hơn 4%.

Các tác giả xin chân thành cảm ơn Dr.Milan Zvara đã cho những gợi ý quý báu và Dr. Vaclav Koubele đã giúp đỡ trong việc lập chương trình cho máy tính để xử lý các số liệu thực nghiệm.

Công trình được hoàn thành nhờ sự hỗ trợ một phần tài chính của chương trình nghiên cứu cơ bản cấp Nhà nước KF-04.

TÀI LIỆU THAM KHẢO

1. I. Ohlidal and K. Navratil, Thin Solid Film, 74(1980) 51.
2. W. P. Ellis, J. Opt. Soc. Am., 53(1963) 6'13.
3. I. Ohlidal and K. navratil, Thin Solid Films, 148 (1987) 17.
4. Y. Nemirovsky, I. Kidron, J. Electrochem. Soc, 126 (1979) 768.
5. N.T.B Ngoc and M. Zvara, Czech. J. Phys, 40 (1990) 821.
6. A. Gauthies, France Paten. Appl. 2 553580.
7. P. Hoshl, P. Moravec, V. Prosser, V. Socx and R. Grill, Phys. Status Solidi B145 (1988) 673.
8. L. Vina, C. Uimbach, M. Cardana and L. Vodopyanop, Phys. Rev. B29 (1984) 6752.

VNU. Journal of science. Nat. sci, t.XI, n°2-1995

DETERMINATION OF THE THICKNESS OF A NON-ABSORPTION THIN FILM ON AN ABSORPTION SUBSTRATE BY MEASUREMENTS OF THE REFLECTANCE IN TWO DIFFERENT AMBIENTS.

*Nguyen Thi Bao Ngoc, Nguyen Van Nha
Teacher's Traning College , VNU.*

Determination of the thickness and the spectral dependence of the refractive index of a non-absorption thin film placed on an absorption substrate by measurements of the reflectance in two different ambients is especially suitable for non-absorption thin film with a thickness of a few tens nanometres.

In this paper a new method to choose a true relation for determination of the thickness of non-absorption thin film from measured data in experiments are presented. This way had applied to obtain to obtain the thickness of oxide film deposited onto HgCdTe (MCT) substrate from measurements of the reflectance in the air the distilled water.

This work carried out by partial support of the. National Fundamental Research Programme KT-04.