Seria: MATEMATYKA-FIZYKA z. 73

Nr kol. 1284

Andrzej GRABOWSKI, Marian NOWAK

WYZNACZANIE OPTYCZNYCH I GEOMETRYCZNYCH PARAMETRÓW CIENKICH WARSTW A-SI:H METODĄ BADAŃ TRANSMISJI OPTYCZNEJ

Streszczenie. W pracy przedstawiono wyniki pomiarów interferencyjnie modulowanych współczynników transmisji cienkich warstw a-Si:H oraz μ -Si:H o różnej grubości w zakresie widmowym od 0.57 μ m do 1.1 μ m. Wyznaczono na tej podstawie grubości i wariancje ich zmian w oświetlanym obszarze próbki oraz charakterystyki widmowe współczynników absorpcji oraz części rzeczywistych zespolonych współczynników załamania światła w badanych warstwach. Do charakterystyk tych dopasowano krzywe teoretyczne odpowiadające absorpcji podstawowej oraz Urbacha.

DETERMINATION OF OPTICAL AND GEOMETRICAL PARAMETERS OF A-SI:H THIN FILMS USING OPTICAL TRANSMITTANCE

Summary. The interference modulated transmission spectra for normal incidence of light on a-Si:H thin films of different thickness are reported in the spectral range from 0.57μ m to 1.1μ m. They were used to evaluate thickness of the films and their standard variations in illuminated sample areas as well as spectral characteristics of real part of refractive indices and absorption coefficients. From the fitting of spectral characteristics of absorption coefficients the Tauc and Urbach parameters of a-Si:H were obtained.

ИССЛЕДОВАНИЕ ОПТИЧЕСКИХ И ГЕОМЕТРИЧЕСКИХ КОЭФИЦИЕНТОВ ТОНКИХ ПЛЕНОК A-SI:Н МЕТОДОМ ПРОПУСКАНИЯ СВЕТА

Резюме. Представлено интерференционно модулированые спектры оптического пропускания тонких пленок a-Si:H и µ-Si:H разной толщины в области волн от 0.57 µm к 1.1 µm. Вычислено из них толщины пленок и их варианцие в освещеных областях пленок а также спектралъные характеристики показателя преломления и коэффициента поглощения. Из апроксимации спектров коэффициентов поглощения определено величины параметров Тауца и Урбаха a-Si:H.

1. Wstęp

Wartości parametrów optycznych cienkich warstw a-Si:H, tzn. część rzeczywista współczynnika załamania oraz współczynnik pochłaniania światła, zależą od warunków otrzymania tych warstw. Technologia determinuje także zależność tych parametrów od energii fotonów, bowiem zależność ta stanowi odbicie struktury energetycznej stanów elektronowych w danym półprzewodniku. Z tego względu istotne jest opanowanie metodyki badań umożliwiających wyznaczanie charakterystyk widmowych parametrów optycznych cienkich warstw.

Celem niniejszej pracy było wyznaczenie grubości i wariancji jej zmian oraz widmowych zależności części rzeczywistej zespolonego współczynnika załamania i współczynnika absorpcji promieniowania w cienkich warstwach a-Si:H oraz μ -Si:H o różnej grubości. Sprawdzono przy tym użyteczność metody wyznaczania optycznych i geometrycznych parametrów cienkich warstw, jaką zaproponowano w [1] i rozwinięto w [2]. Metoda ta polega na dopasowaniu odpowiednich zależności teoretycznych do wyników badań zależności widmowej transmisji optycznej modulowanej interferencyjnie. W dopasowaniu tym brany jest pod uwagę gaussowski rozkład zmian fazy promieniowania przechodzącego przez próbkę.

2. Eksperyment

Badane warstwy a-Si:H oraz μ -Si:H naniesiono metodą napylania katodowego na płytki podłożowe ze szkła Corning-7059 na Uniwersytecie w Iraklio w Grecji. Grubości tych warstw według oszacowania za pomocą piezoelektrycznego mikrometru mieściły się w granicach od 1,1 μ m do 3,6 μ m. Płytki podłożowe Corning-7059 mają grubość 0,52 mm. Badane próbki stanowiły zatem typowe układy dwuwarstwowe: cienka warstwa na grubym podłożu.

Jako metodę badań przyjęto pomiary transmisji optycznej i opracowanie wyników zaproponowane w [1] i rozwinięte w [2] do przypadku uwzględniającego wpływ szerokości $\Delta\lambda$ przedziału długości fal światła monochromatycznego stosowanego w badaniach. Widma transmisji optycznej otrzymano stosując jako źródło światła lampę halogenową o mocy 150 [W], podwójny monochromator interferencyjny GDM-1000 oraz zestaw transmisyjny filtrów odcinających. Szczelina wyjściowa monochromatora miała szerokość 1,5 mm. Monochromatyczna wiązka światła po wyjściu z monochromatora była skupiona obiektywem i wprowadzona do kabla światłowodowego typu Y o stosunku powierzchnii świecących jak 1:9. Światło o mniejszym natężeniu prowadzono bezpośrednio do fotodetektora. Natomiast pozostałą część światła doprowadzono do przystawki zbudowanej na bazie mikroskopu, w którym umieszczono badane próbki. W trakcie pomiarów znajdowały się one w powietrzu o temperaturze pokojowej. Zogniskowane obiektywem światło przechodziło



Rys. 1. Widmo transmisji optycznej próbki #242 a-Si (+ - wyniki doświadczalne pomiaru transmisji promieniowania przez próbkę; krzywa ciągła przedstawia teoretyczną transmisję obliczoną dla grubości w = 5060 [nm] i jej wariancji $\sigma_w = 30 \text{ [nm]}$ oraz $n(h\nu)$ i $k(h\nu)$ przedstawionych na rys. 7 i 8)

Fig. 1. Optical transmittance of the film #242 of a-Si:H vs photon energy (+ experimental results, solid curve represents theoretical transmittance calculated for w = 5060 [nm], $\sigma_w = 30$ [nm], $n(h\nu)$ and $k(h\nu)$ presented in fig. 7 and 8)

przez próbkę, otwór kalibracyjny o średnicy 1 [mm], a następnie jednotorowym kablem światlowodowym było doprowadzane do fotodetektora. Zarówno ten detektor, jak i fotodetektor rejestrujący tzw. natężenie światla odniesienia były umieszczone w specjalnej głowicy pomiarowej.

W eksperymencie stosowano dwa rodzaje głowic pomiarowych: głowice z fotopowielaczami typu M12FC51 oraz głowice z fotodiodami półprzewodnikowymi (krzemowymi BPYP-34 oraz germanowymi SFH-231) pracującymi w reżimie zwarciowym. Przeprowadzono pomiary transmisji optycznej w zakresie widmowym od 0,57 [μ m] do 1,111 [μ m]. Natężenie prądów fotodetektorów rejestrujących światło przechodzące przez próbki mierzono elektrometrem Keithley 617, natomiast w torze odniesienia używano do pomiarów pikoamperomierza Keithley 485/4853. Jako zasilacz wysokonapięciowy fotopowielaczy stosowano ZWN-42.

Cały eksperyment i pomiary były sterowane komputerem typu IBM/PC-AT poprzez magistralę IEC-625.



Rys. 2. Widmo transmisji optycznej próbki #248 a-Si (+ - wyniki doświadczalne pomiaru transmisji promieniowania przez próbkę; krzywa ciągła przedstawia teoretyczną transmisję obliczoną dla grubości w = 3836 [nm] i jej wariancji $\sigma_w = 6 \text{ [nm]}$ oraz $n(h\nu)$ i $k(h\nu)$ przedstawionych na rys. 7 i 9)

Fig. 2. Optical transmittance of the film #248 of a-Si:H vs photon energy (+ experimental results, solid curve represents theoretical transmittance calculated for w = 3836 [nm], $\sigma_w = 6$ [nm], $n(h\nu)$ and $k(h\nu)$ presented in fig. 7 and 9)

3. Wyniki badań

Uzyskane w eksperymencie widma transmisji optycznej przebadanych warstw amorficznych i mikrokrystalicznych różnej grubości są przedstawione na rys. 1 do 5. Charakteryzują się one ostrymi pikami interferencyjnymi. Duża liczba tych pików w przebadanym zakresie widmowym sprawiła, iż zastosowana metoda wyznaczania optycznych i geometrycznych parametrów cienkich warstw na podstawie widmowych badań transmisji optycznej [1] była szczególnie obiecująca. Metoda ta była realizowana za pomocą pakietu programów numerycznych T-WAVENU.EXE. Krzywe ciągle na rysunkach 1 do 5 przedstawiają zależności teoretyczne dopasowane tą metodą do wyników doświadczalnych pomiarów transmisji. Dopasowanie to umożliwiło m.in. wyznaczenie grubości badanych warstw oraz wariancje zmian grubości σ_w w obszarach próbek, przez które przechodziło światło w trakcie pomiarów (patrz tabela 1).



Rys. 3. Widmo transmisji optycznej próbki #247 a-Si (+ - wyniki doświadczalne pomiaru transmisji promieniowania przez próbkę; krzywa ciągła przedstawia teoretyczną transmisję obliczoną dla grubości w = 3770 [nm] i jej wariancji $\sigma_w = 2$ [nm] oraz $n(h\nu)$ i $k(h\nu)$ przedstawionych na rys. 7 i 10)

Fig. 3. Optical transmittance of the film #247 of a-Si:H vs photon energy (+ experimental results, solid curve represents theoretical transmittance calculated for w = 3770 [nm], $\sigma_w = 2$ [nm], $n(h\nu)$ and $k(h\nu)$ presented in fig. 7 and 10)

Tabela 1

Wartości wyznaczonych grubości (w) badanych warstw, wariancji σ_w ich grubości w badanym obszarze próbki, średniej szerokości E_a przerwy energii wzbronionych, parametru D ze wzoru (1), optycznej przerwy energetycznej E_g^0 , parametru A ze wzoru (2), parametru k_0 ze wzoru (3) oraz parametru Urbacha E_0

Nr próbki	242	248	247	238	181
$w \pm \sigma_w$ (nm)	5060 ± 30	3836 ± 6	3770 ± 2	3565 ± 6	1280 ± 5
E_a (eV)	4.93	4.50	4.28	4.50	5.04
D (eV ²)	159	163	175	166	171
E_g^0 (eV)	1.62 ± 0.09	1.64 ± 0.03	1.62 ± 0.07	1.69 ± 0.01	1.90 ± 0.04
$A (10^{5}/(eVm))$	175 ± 2	184 ± 2	218 ± 1	225 ± 2	289 ± 4
$k_0 \ (10^{-13} \text{eV})$	863 ± 12	536 ± 98	314 ± 10	414 ± 87	2100 ± 450
$E_0 \ (10^{-4} \mathrm{eV})$	550 ± 2	667 ± 6	634 ± 9	496 ± 4	161 ± 1



Rys. 4. Widmo transmisji optycznej próbki #238 a-Si (+ - wyniki doświadczalne pomiaru transmisji promieniowania przez próbkę; krzywa ciągła przedstawia teoretyczną transmisję obliczoną dla grubości w = 3565 [nm] i jej wariancji $\sigma_w = 6 \text{ [nm]}$ oraz $n(h\nu)$ i $k(h\nu)$ przedstawionych na rys. 7 i 11)

Fig. 4. Optical transmittance of the film #238 of a-Si:H vs photon energy (+ experimental results, solid curve represents theoretical transmittance calculated for w = 3565 [nm], $\sigma_w = 6$ [nm], $n(h\nu)$ and $k(h\nu)$ presented in fig. 7 and 11)

Wpływ wariancji σ_w grubości warstwy na uzyskane widmo transmisji pokazano na rys. 6. Krzywa ciągła odpowiada przypadkowi idealnie płaskorównoległej cienkiej warstwy ($\sigma_w = 0$). Krzywa przerywana jest obliczona dla $\sigma_w = 6$ [nm]. W tym ostatnim przypadku następuje wyraźne zmniejszenie amplitudy zmian interferencyjnych.

Dopasowanie zależności teoretycznych do wyników badań transmisji optycznej przedstawionych na rys. 1 do 5 pozwoliło także wyznaczyć zależności widmowe części rzeczywistej współczynników załamania (rys. 7) oraz współczynników absorpcji (rys. 8 do 12) promieniowania w badanych próbkach. Wyniki przedstawione na rys. 7 do 12 zaznaczono punktami. Jednak ze względu na dużą ich gęstość na charakterystykach widmowych (pomiary wykonano dla 426 energii fotonów) punkty te zlewają się w krzywe ciągłe.



Rys. 5. Widmo transmisji optycznej próbki #181 a-Si (+ - wyniki doświadczalne pomiaru transmisji promieniowania przez próbkę; krzywa ciągła przedstawia teoretyczną transmisję obliczoną dla grubości w = 1280 [nm] i jej wariancji $\sigma_w = 5$ [nm] oraz $n(h\nu)$ i $k(h\nu)$ przedstawionych na rys. 7 i 12)

Fig. 5. Optical transmittance of the film #181 of a-Si:H vs photon energy (+ experimental results, solid curve represents theoretical transmittance calculated for w = 1280 [nm], $\sigma_w = 5$ [nm], $n(h\nu)$ and $k(h\nu)$ presented in fig. 7 and 12)

Krzywe przerywane zaznaczone na rys. 7a i 7b odpowiadają pólempirycznej zależności [3]

$$n^{2}(h\nu) = 1 + \frac{D}{E_{a}^{2} - (h\nu)^{2}},$$
(1)

gdzie: *E_a* — średnia wartość szerokości przerwy wzbronionej, *D* — czynnik proporcjonalności zależny m.in. od gęstości elektronów [3].

Zależność (1) została dopasowana metodą najmniejszych kwadratów do wyznaczonych zależności $n(h\nu)$. W wyniku tego dopasowania otrzymano wartości E_a oraz D odpowiadające przebadanym warstwom (patrz tabela 1).

W przypadku światła silnie pochłanianego $k > 10^5 \text{ [m}^{-1}\text{]}$ zależność widmowa absorpcji podstawowej promieniowania jest zgodna z przewidywaniami modelu Tauca [4]

$$k_T = \frac{A(h\nu - E_g^0)^2}{h\nu},$$
 (2)

gdzie: E_g^0 — szerokość optycznej przerwy energetycznej, A — stała proporcjonalności niezależna od energii padającego promieniowania.



Rys. 6. Widma transmisji optycznej próbki o grubości w = 3836 [nm] i parametrach optycznych $n(h\nu)$ oraz $k(h\nu)$ odpowiadających próbce #248 (patrz rys. 7 i 9) obliczone dla różnych wariancji grubości (krzywa ciągła $\sigma_w = 0$, krzywa przerywana $\sigma_w = 6 \text{ [nm]}$) Fig. 6. Optical transmittance of a w = 3836 [nm] thickness film with optical parameters $n(h\nu)$ and $k(h\nu)$ the same as for sample #248 (see fig. 7 and 9) calculated for different standard variations ($\sigma_w = 0 \text{ [nm]}$ - solid curve, $\sigma_w = 6 \text{ [nm]}$ - broken curve)

Zależność (2) została dopasowana metodą najmniejszych kwadratów do wyznaczonych z badań transmisji charakterystyk widmowych współczynników absorpcji światła w badanych warstwach (rys. 8 do 11). W ten sposób uzyskano wartości E_g^0 oraz A przedstawione w tabeli 1.

Do analizy przebiegu $k(h\nu)$ w obszarze $10^2 \text{ [m}^{-1}\text{]} < k < 10^5 \text{ [m}^{-1}\text{]}$, stosuje się tzw. model Urbacha [5], wynikający z założenia eksponencjalnej zależności energetycznej gęstości stanów w ogonach pasm przewodnictwa i walencyjnego. Zgodnie z tym modelem współczynnik absorpcji wyraża się wzorem

$$k_U = k_0 \exp\left(\frac{h\nu}{E_0}\right),\tag{3}$$

gdzie: E_0 — jest tzw. parametrem Urbacha związanym z nieporządkiem w próbce, k_0 — stała niezależna od energii padającego promieniowania.



Rys. 7. Widmowa zależność części rzeczywistej współczynnika załamania promieniowania w warstwach #238 #242 #247 #248 #181

Fig. 7. Spectral dependences of real part of refractive index of films #238 #242 #247 #248 #181

Zależność (3) została dopasowana metodą najmniejszych kwadratów do wyznaczonych z badań transmisji charakterystryk widmowych współczynników absorpcji światła w badanych warstwach (rys. 8 do 12). W ten sposób uzyskano wartości E_0 oraz k_0 przedstawione w tabeli 1.

W przypadku mikrokrystalicznego krzemu zależność współczynnika absorpcji podstawowej od energii fotonów opisana jest wzorem odpowiadającym tzw. przejściom energetycznym prostym dozwolonym [6]

$$k \cdot h\nu = A \left(h\nu - E_g^0\right)^{1/2},\tag{4}$$

gdzie: E_g^0 — szerokość optycznej przerwy energetycznej, A — stała proporcjonalności niezależna od energii padającego promieniowania.



Rys. 8. Widmo współczynnika absorpcji promieniowania w warstwie #242 (punktami zaznaczono wartości wyznaczone na podstawie badań transmisji, k_T – teoretyczne wartości współczynnika absorpcji podstawowej dopasowane do wyników doświadczalnych, k_U – teoretyczne wartości współczynnika absorpcji Urbacha dopasowane do wyników doświadczalnych)

Fig. 8. Spectral dependence of absorption coefficient of radiation in #242 film (points represent the absorption coefficient estimated from the optical transmittance, k_T – the fitted fundamental absorption coefficient, k_U – the fitted Urbach absorption)

Zależność (4) została dopasowana metodą najmniejszych kwadratów do wyznaczonej z badań transmisji charakterystyki widmowej współczynnika absorpcji światła w warstwie μ -Si (rys. 12). W ten sposób uzyskano wartości E_a^0 oraz A przedstawione w tabeli 1.



Rys. 9. Widmo współczynnika absorpcji promieniowania w warstwie #248 (punktami zaznaczono wartości wyznaczone na podstawie badań transmisji, k_T – teoretyczne wartości współczynnika absorpcji podstawowej dopasowane do wyników doświadczalnych, k_U – teoretyczne wartości współczynnika absorpcji Urbacha dopasowane do wyników doświadczalnych)

Fig. 9. Spectral dependence of absorption coefficient of radiation in #248 film (points represent the absorption coefficient estimated from the optical transmittance, k_T - the fitted fundamental absorption coefficient, k_U - the fitted Urbach absorption)

4. Wnioski

Zależności teoretyczne transmisji optycznej od energii fotonów dopasowane metodą zaproponowaną w [1] oraz [2] wykazują dobrą zgodność z wynikami doświadczalnymi uzyskanymi w niniejszej pracy. Może to świadczyć o skuteczności zastosowanej metody badawczej. Metoda ta pozwoliła wyznaczyć grubości cienkich warstw a-Si:H oraz μ -Si:H, a także ich wariancje w obszarach poddanych badaniom. Równocześnie metoda ta pozwoliła wyznaczyć zależności widmowe części rzeczywistych zespolonych współczynników załamania oraz współczynników absorpcji światła w przebadanych warstwach. Charakterystyka widmowa współczynnika absorpcji światła w µ-Si świadczy o tym, że decydującymi mechanizmami pochłaniania promieniowania w analizowanym przedziale widmowym są absorpcja podstawowa odpowiadająca przejściom energetycznym prostym dozwolonym oraz absorpcja Urbacha.



Rys. 10. Widmo współczynnika absorpcji promieniowania w warstwie #247 (punktami zaznaczono wartości wyznaczone na podstawie badań transmisji, k_T - teoretyczne wartości współczynnika absorpcji podstawowej dopasowane do wyników doświadczalnych, k_U - teoretyczne wartości współczynnika absorpcji Urbacha dopasowane do wyników doświadczalnych, czalnych)

Fig. 10. Spectral dependence of absorption coefficient of radiation in #247 film (points represent the absorption coefficient estimated from the optical transmittance, k_T - the fitted fundamental absorption coefficient, k_U - the fitted Urbach absorption)

Charakterystyki widmowe współczynnika absorpcji światła w a-Si:H świadczą o tym, że decydującymi mechanizmami pochłaniania promieniowania w analizowanym przedziale widmowym są absorpcja podstawowa Tauca oraz absorpcja Urbacha. W przypadku najgrubszej warstwy #242 wyznaczone wartości współczynników absorpcji dla mniejszych energii fotonów są znacznie wyższe od ekstrapolowanych przewidywań dopasowanej absorpcji Urbacha (rys. 8). Może to wynikać z zachodzącej w tym przypadku absorpcji światła na defektach. Prawdopodobnie defektami tymi są niewysycone wiązania atomów Si.



Rys. 11. Widmo współczynnika absorpcji promieniowania w warstwie #238 (punktami zaznaczono wartości wyznaczone na podstawie badań transmisji, k_T – teoretyczne wartości współczynnika absorpcji podstawowej dopasowane do wyników doświadczalnych, k_U – teoretyczne wartości współczynnika absorpcji Urbacha dopasowane do wyników doświadczalnych, z_{U-1}

Fig. 11. Spectral dependence of absorption coefficient of radiation in #238 film (points represent the absorption coefficient estimated from the optical transmittance, k_T - the fitted fundamental absorption coefficient, k_U - the fitted Urbach absorption)



Rys. 12. Widmo współczynnika absorpcji promieniowania w warstwie #181 (punktami zaznaczono wartości wyznaczone na podstawie badań transmisji, k_F – teoretyczne wartości współczynnika absorpcji podstawowej dopasowane do wyników doświadczalnych, k_U – teoretyczne wartości współczynnika absorpcji Urbacha dopasowane do wyników doświadczalnych)

Fig. 12. Spectral dependence of absorption coefficient of radiation in #181 film (points represent the absorption coefficient estimated from the optical transmittance, k_F the fitted fundamental absorption coefficient, k_U - the fitted Urbach absorption)

Podziękowania

Autorzy serdecznie dziękują Prof. P. Tzanetakis z Uniwersytetu w Iraklio, Grecja, za udostępnienie próbek a-Si.

Praca powstała w ramach tematu BW-327/RMF-1/93 finansowanego przez Politechnikę Śląską w Gliwicach.

Literatura

 M. Nowak, Metoda wyznaczania optycznych i geometrycznych parametrów cienkich warstw na podstawie widmowych badań transmisji optycznej, Zeszyty Naukowe Politech. Śląsk. (w druku).

- [2] M. Nowak, Thin Solid Films 254 (1995), 200.
- [3] M. H. Brodsky, P. A. Leary, J. Non-Cryst. Solids 35 & 36, 487 (1980).
- [4] J. Tauc, Amorphous and Liquid Semiconductors, Plenum Press, London and New York 1974.
- [5] R. A. Street, Hydrogenated Amorphous Silicon, University Press, Cambridge 1991.
- [6] J. I. Pankove, Zjawiska optyczne w półprzewodnikach, WNT, Warszawa 1974.

Recenzent: Prof. dr hab. Sławomir Kończak

Wpłynęło do redakcji 07.06.1994 r.

Abstract

Values of optical parameters of thin films of amorphous and micrycrystalline hydrogenated silicon (s-Si:H and μ -Si:H), i.e. n - real part of refractive index and k - absorption coefficient of radiation, depend on conditions in which the films were prepared. The technology influences the spectral characteristics $n(\lambda)$ and $k(\lambda)$ because are determined by energy distribution of electronic states in energy gap of a semiconductor. The interference modulated transmission spectra for normal incidence of light on sputtered amorphous and micrycrystalline hydrogenated silicon (a-Si:H and μ -Si:H) thin films of different thickness were used to evaluate the spectral characteristics of real parts of refractive indices and absorption coefficients of radiation in the spectral range from $0.57\mu m$ to $1.1\mu m$. The thickneses of the films and their standard variations in the illuminated sample areas were also determined taking into account the Gaussian distribution of the change in phase of radiation traversing the sample. A remarkable good fitting was obtained of spectral dependence of optical transmittance. From the fitting of the spectral characteristics of absorption coefficients the Tauc and Urbach parameters of the investigated semiconductors were obtained. The spectral dependence of the absorption coefficient of μ -Si:H suggests that the more important optical transitions are the allowed direct-gap band to band transitions and those described by the Urbach rule. The spectral dependence of the absorption coefficient of a-Si:H suggests that the more important are the fundamental absorption described by the Tauc formula and the Urbach absorption. In the case of the most thick of the investigated sample ($w = 5.06 \mu m$) the values of absorption coefficients determined for smallest photon energies are greated than those predicted by the Urbach rule. The probable reason of that is the relatively strong absorption of light on defects, e.g. on the not hydrogenated dangling bonds existing the in the sample.