

UNIVERSIDADE FEDERAL DO RIO GRANDE DO SUL  
INSTITUTO DE FÍSICA  
BRUNO JACQUES BARRETO

**TÉCNICA POLARIMÉTRICA ESPECTRAL COMO FERRAMENTA  
COMPLEMENTAR À ELIPSOMETRIA DE FILMES FINOS DIELÉTRICOS  
ISOTRÓPICOS E HOMOGÊNEOS**

Porto Alegre  
2012

Bruno Jacques Barreto

**TÉCNICA POLARIMÉTRICA ESPECTRAL COMO FERRAMENTA  
COMPLEMENTAR À ELIPSOMETRIA DE FILMES FINOS DIELÉTRICOS  
ISOTRÓPICOS E HOMOGÊNEOS\***

Trabalho de Conclusão de Curso apresentado  
ao Instituto de Física da Universidade Federal  
do Rio Grande do Sul, como requisito parcial  
para obtenção do título de Bacharel em Física.

Orientador: Marcelo Barbalho Pereira  
Coorientador: Flavio Horowitz

Porto Alegre  
2012

---

\* Trabalho parcialmente financiado pelo CNPq.

# Resumo

A Elipsometria é uma técnica amplamente utilizada para a caracterização óptica de filmes finos. Entretanto esta técnica geralmente apresenta múltiplas soluções para a curva de dispersão e espessura física, fazendo com que seja necessária a utilização de técnicas complementares para uma caracterização acurada das amostras. Para evitar estas falsas soluções, um método mais acurado é proposto, utilizando uma *técnica polarimétrica espectral* complementar. Primeiro, uma curva inicial de dispersão do filme, independente da sua espessura física, é obtida utilizando-se a mesma configuração usada para elipsometria espectral. Esta curva inicial é utilizada mais tarde para a determinação da espessura física do filme e para o refinamento da curva de dispersão. Adicionalmente, ambas as medidas, elipsometria espectral e polarimetria, são realizadas na mesma posição da amostra, aumentando a confiabilidade dos resultados. A caracterização de filmes finos de  $\text{TiO}_2$  é usada para corroborar a validade do método proposto.

# Abstract

Ellipsometry is a highly sensitive optical technique for thin films characterization. However it usually presents multiple solutions for the film thickness and also for its dispersion curve. To prevent these fake solutions, a more accurate method with the addition of a complementary *spectral polarimetric technique* is proposed. First, an initial film dispersion curve, independent of its physical thickness is provided, using the same setup as used for spectral ellipsometry measurements. Later, this initial curve is used for the thickness determination and the dispersion curve refinement. Furthermore, both measurements, spectral ellipsometry and polarimetry, are performed on the same sample position, increasing the reliability of the results. The characterization of TiO<sub>2</sub> thin films is shown to corroborate the validity of the proposed method.

# Agradecimentos

Meus principais agradecimentos vão para a minha família, que esteve ao meu lado me concedendo o apoio psicológico e também a ajuda financeira necessária durante todos os anos da graduação em Física.

Gostaria também de fazer um agradecimento especial ao meu orientador, Marcelo, pelos dois anos de trabalho juntos, pela experiência que pude adquirir durante este período, pelo companheirismo e pela amizade.

Finalmente, gostaria de agradecer ao meu coorientador, Flavio, pela receptividade que tive no Laboratório de Laser e Óptica, pelo seu apoio e sua colaboração na construção deste projeto.

# Sumário

<b>Resumo</b>	<b>ii</b>
<b>Abstract</b>	<b>iii</b>
<b>Agradecimentos</b>	<b>iv</b>
<b>Publicações</b>	<b>vii</b>
<b>Lista de figuras</b>	<b>viii</b>
<b>1. Introdução</b>	<b>1</b>
1.1. Motivações	1
1.2. Técnica de Abelès	1
1.3. Objetivos	2
<b>2. Teoria</b>	<b>3</b>
2.1. Radiação Eletromagnética	3
2.2. Polarização da Luz	4
2.3. As polarizações P e S	5
2.4. Elipsometria Espectral	6
2.4.1. Aquisição de Dados Elipsométricos	7
2.4.2. Análise dos Dados Elipsométricos	8
2.5. Ângulo de Brewster	9
2.6. Técnica de Abelès	11

2.7. Técnica Polarimétrica Espectral (TPE)	13
<b>3. Metodologia</b>	15
3.1. Elipsômetro Espectral SOPRA GES-5E	15
3.2. Desenvolvimento de Instrumentação	16
3.3. Fabricação de Amostras	16
3.4. Caracterização de Amostras	17
3.4.1. TPE	17
3.4.2. Elipsometria Espectral	18
<b>4. Resultados</b>	19
4.1. Amostras de Titânia	19
4.2. Medidas	19
<b>5. Conclusões</b>	24
<b>Referências</b>	26

# Publicações

1. PEREIRA, M. B.; BARRETO, B. J.; HOROWITZ, F. **Spectral Polarimetry Technique as a Complementary Tool to Ellipsometry of Dielectric Films.** In: Optical Interference Coatings Topical Meeting (OIC), 2010, Tucson. Optical Interference Coatings (OIC), 2010.
2. PEREIRA, M. B.; BARRETO, B. J.; HOROWITZ, F. **Spectral polarimetry technique as a complementary tool to ellipsometry of dielectric films,** Appl. Opt. 50, C420-C423, 2011.

# Lista de Figuras

- **Figura 2.1:** Esquema da propagação de uma onda eletromagnética no espaço. (Pg. 3)
- **Figura 2.2:** Polarização da luz através do uso de um filtro polarizador. (Pg. 5)
- **Figura 2.3:** Representações das polarizações P e S da luz. (Pg. 6)
- **Figura 2.4:** Esquema representando a medição da elipse de polarização da luz refletida. (Pg. 7)
- **Figura 2.5:** Esquema representando o funcionamento de um elipsômetro espectral de extinção típico. (Pg. 8)
- **Figura 2.6:** Dipolo elétrico reemitindo a luz incidente p-polarizada na condição de Brewster. (Pg. 10)
- **Figura 2.7:** Tipos de medida realizados com a Técnica de Abelès. (Pg. 12)
- **Figura 2.8:** Representação das medidas realizadas com a TPE. (Pg. 13)
- **Figura 3.1:** Elipsômetro Espectral SOPRA GES-5E do Laboratório de Laser e Óptica da UFRGS. (Pg. 15)
- **Figura 3.2:** Base de transladores que foi construída e adaptada ao Elipsômetro. (Pg. 16)
- **Figura 4.1:** Intersecção entre os espectros de reflexão do filme e do substrato para a amostra 1 no ângulo de incidência  $\theta = 67,5^\circ$ . (Pg. 20)
- **Figura 4.2:** Dados obtidos com a TPE e o ajuste de Cauchy para a amostra 1. (Pg. 21)

# Capítulo 1: Introdução

## 1.1. Motivações

O controle de propriedades ópticas de materiais é de muita relevância em diversas áreas da indústria e pesquisa. Entre essas propriedades temos, por exemplo, a curva de dispersão e a espessura física.

Entre as diversas técnicas ópticas empregadas para isso, a Elipsometria Espectral é provavelmente a mais abrangente, podendo tanto caracterizar filmes ultrafinos, finos, materiais na forma de *bulk*, filmes isotrópicos e anisotrópicos, assim como filmes multicamadas [1]. Entretanto, pode-se observar que mesmo para o filme dielétrico monocamada mais simples, ou seja, isotrópico e homogêneo, esta técnica pode apresentar múltiplas soluções, o que faz com que seja necessário obter informações complementares que auxiliem na exclusão destas soluções falsas.

Nesse contexto, o trabalho apresentado aqui propõe um método de caracterização baseado na Técnica de Abelès [2], a qual é estendida a medidas espectrais e que denominaremos de **Técnica Polarimétrica Espectral (TPE)**, com a qual é possível estimar a curva de dispersão do filme fino  $[n(\lambda)]$  independentemente de sua espessura física. Esta curva de dispersão é utilizada posteriormente como uma primeira estimativa nos modelos de elipsometria para a determinação acurada das propriedades ópticas do filme. Além disso, as medidas de TPE e as de Elipsometria são realizadas no mesmo equipamento, um elipsômetro espectral SOPRA GES-5E, sem a necessidade de recolocação das amostras, o que garante que as duas medidas sejam realizadas sempre na mesma posição da amostra, aumentando assim a precisão dos resultados.

## 1.2. Técnica de Abelès

Em 1949, o físico francês Florin Abelès, desenvolveu uma técnica baseada no conceito de ângulo de Brewster para determinar o índice de refração superficial de filmes finos isotrópicos.

Ao contrário de técnicas usuais de medida do índice de refração (Elipsometria, Modos Guiados [3] e Curvas Envoltórias [4]), a medida realizada com a Técnica de Abelès independe da espessura física do filme, obtendo a curva de dispersão do filme através de comparações da intensidade de uma luz polarizada refletida pelo filme fino e por seu substrato. De fato, as ondas de luz analisadas na técnica são oriundas das reflexões nas interfaces que separam os dois meios materiais de índice de refração distintos, respectivamente ar/filme + filme/substrato e ar/substrato.

Uma descrição detalhada da Técnica de Abelès será apresentada na Seção 2.6.

### **1.3. Objetivo**

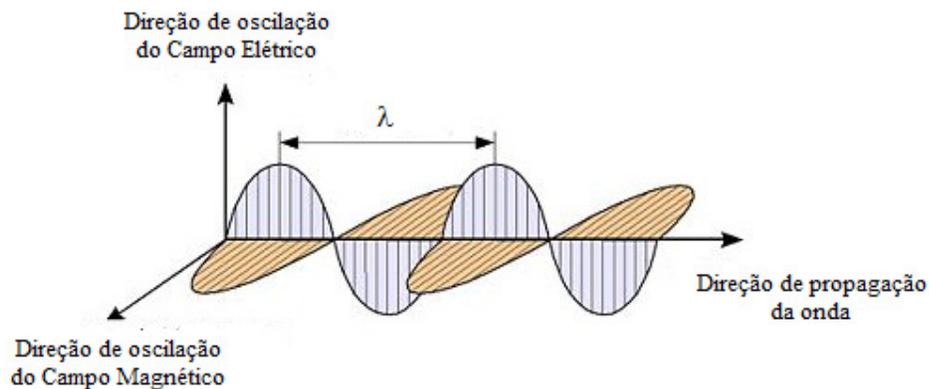
O principal objetivo deste trabalho é provar a viabilidade do método proposto, que utiliza a TPE como uma medida complementar a técnica de Elipsometria Espectral, resultando numa caracterização mais acurada de filmes finos dielétricos isotrópicos e homogêneos, onde as soluções falsas obtidas por elipsometria são descartadas.

# Capítulo 2: Teoria

## 2.1. Radiação Eletromagnética

Partículas carregadas emitem e absorvem uma forma de energia chamada de radiação eletromagnética [5]. Esta radiação se comporta como uma onda transversal que se propaga pelo espaço com velocidade de propagação  $\vec{v}$  e momento linear  $\vec{k}$ . A radiação eletromagnética possui uma componente relacionada ao campo elétrico  $\vec{E}$  e outra relacionada ao campo magnético  $\vec{B}$  [5]. Estas componentes oscilam em fase, são perpendiculares entre si e, ao mesmo tempo, ambas são perpendiculares à direção de propagação da onda, como mostra a Figura 2.1. No vácuo, a radiação eletromagnética se propaga com uma velocidade característica, a velocidade da luz  $\vec{c}$ .

A radiação eletromagnética é caracterizada de acordo com a frequência de propagação de sua onda  $f$ , ou ainda de acordo com seu comprimento de onda  $\lambda$ , o qual é a distância entre dois vales ou dois picos da onda, conforme indicado na Figura 2.1.



**Figura 2.1:** Esquema da propagação de uma onda eletromagnética no espaço, onde estão representadas as direções de oscilação dos campos elétrico e magnético.

O comprimento de onda é inversamente proporcional à frequência de acordo com a equação

$$v = \lambda f. \quad (2.1)$$

O intervalo de todas as frequências possíveis para a radiação eletromagnética é chamado de espectro eletromagnético. O espectro eletromagnético se estende desde frequências abaixo das utilizadas em transmissões de rádio, até limites de baixíssimos comprimentos de onda (frequências elevadas), como a radiação gama [5].

Neste trabalho, a caracterização dos filmes finos via elipsometria espectral é feita com luz visível, ou seja, trabalhamos com radiação eletromagnética no intervalo de comprimentos de onda de 400 nm – 750 nm aproximadamente.

## 2.2. Polarização da Luz

Usualmente, quando se propaga, uma onda eletromagnética do espectro visível (luz) tem seu vetor campo elétrico ( $\vec{E}$ ) oscilando em direções aleatórias com o tempo, ou seja, ela é uma onda não polarizada. Isso é o que acontece, por exemplo, nas ondas emitidas por uma fonte de luz comum (como o sol ou uma lâmpada elétrica) [6].

Por outro lado, existem processos naturais, assim como também artificiais, em que se pode selecionar uma direção não aleatória para a vibração do campo elétrico da luz, ou seja, polarizar a luz. Nesta condição, a luz polarizada é classificada nos seguintes tipos [6]:

- Linear – o vetor campo elétrico oscila em amplitude numa direção fixa no espaço.
- Circular – o vetor campo elétrico mantém sua amplitude constante, entretanto sua direção muda conforme ele se propaga, descrevendo uma trajetória na forma de um círculo no tempo.
- Elíptica – a amplitude e a direção do vetor campo elétrico variam conforme ele se propaga descrevendo uma trajetória na forma de uma elipse no tempo.

O giro da direção do vetor campo elétrico no tempo, para as polarizações circular e elíptica, pode ser tanto no sentido horário, como no sentido anti-horário.

Em geral, a polarização de uma onda eletromagnética é uma questão complexa quando esta não se propaga no espaço vazio como, por exemplo, em um *guia de onda* na forma de

uma fibra óptica, o campo elétrico pode ter componentes longitudinais além de transversais. Entretanto, para este trabalho, uma descrição mais básica de polarização é suficiente.

Uma maneira simples de polarizar a luz é através do uso de um filtro polarizador (*polaroid*), o qual é composto por um polímero de nitrocelulose dopado com cristais de *herapatite*, em que suas cadeias são alinhadas em uma direção preferencial durante o processo de fabricação. Com isso, campos elétricos que oscilam paralelamente a estas cadeias são absorvidos pelo material, ou seja, este filtro tem a capacidade de selecionar uma única direção de propagação do campo elétrico da luz, polarizando-a linearmente, como mostrado abaixo na Figura 2.2.

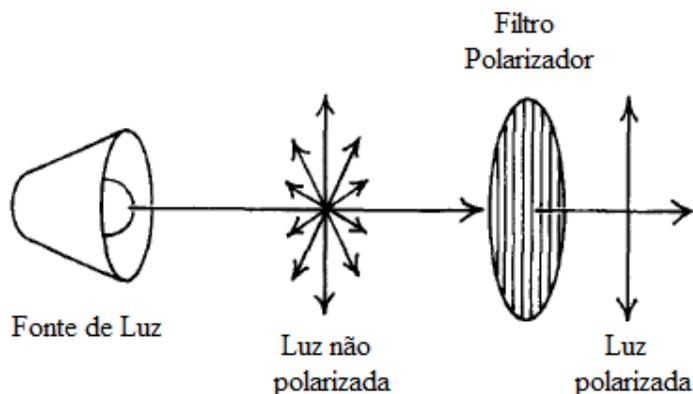
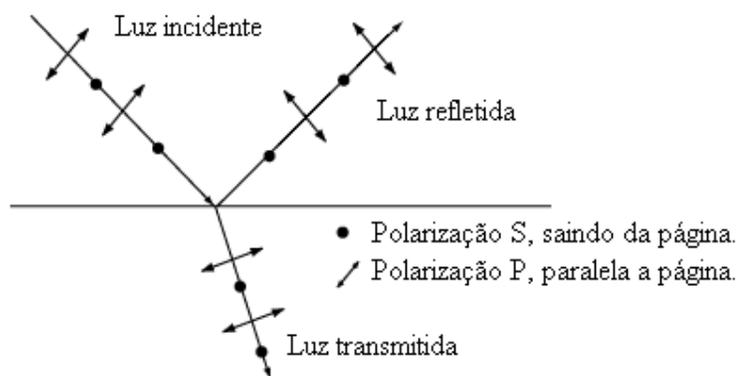


Figura 2.2: Polarização da luz através do uso de um filtro polarizador.

### 2.3. As polarizações P e S

Um sistema de coordenadas frequentemente utilizado para descrever a polarização da luz que incide em uma superfície faz referência ao próprio plano de incidência da luz, ou seja, o plano que contém as ondas incidente, refletida e refratada, conforme mostra a Figura 2.3. A componente do campo elétrico paralela a este plano é denominada *tipo-p* (paralela) ou *TM* (transversal magnética) e a componente perpendicular a este plano é denominada *tipo-s* (de *senkrecht*, perpendicular em alemão) ou *TE* (transversal elétrica). A luz com campo elétrico tipo-p é dita p-polarizada e, conseqüentemente, luz com o campo elétrico tipo-s é dita s-polarizada.



**Figura 2.3:** Representação das polarizações P e S da luz.

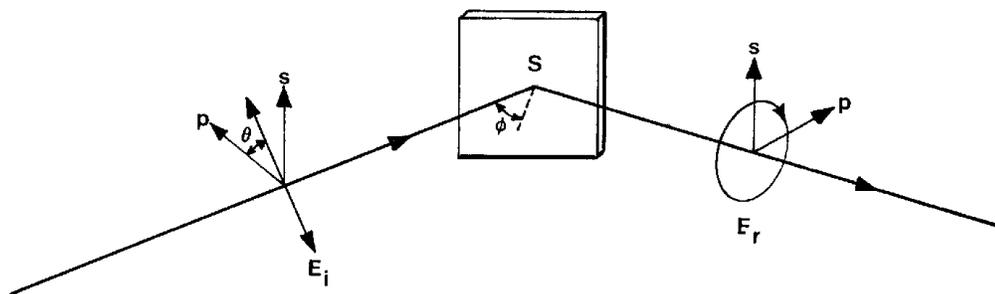
## 2.4. Elipsometria Espectral

A Elipsometria Espectral pode ser definida como uma técnica óptica não perturbativa que usa a mudança no estado de polarização da luz para a caracterização *in-situ* de materiais na forma de *bulk* e filmes finos.

Em Elipsometria, um feixe colimado de luz monocromática, que é polarizado em um estado conhecido, incide sobre a superfície da amostra em estudo. O estado de polarização do feixe refletido pela amostra é então analisado. A partir dos estados de polarização do feixe incidente e do feixe refletido, razões entre os coeficientes de reflexão da superfície para dois estados incidentes ortogonais de polarização (normalmente as polarizações *p* e *s*) podem ser determinadas. Em seguida, estas razões são relacionadas com as propriedades estruturais e ópticas do material, invocando um modelo teórico apropriado da estrutura do material e também a teoria da reflexão de uma onda eletromagnética.

Na Elipsometria, uma das duas ondas copropagantes ortogonalmente polarizadas, pode atuar como uma referência para a outra. Na medida em que o estado de polarização da luz é determinado pela sobreposição das componentes ortogonais do vetor campo elétrico, um **elipsômetro** pode ser pensado como um equipamento que quantifica esta sobreposição. Além disso, a Elipsometria envolve apenas amplitudes relativas e medições de fases relativas, por isso ela se torna altamente precisa, qualificando-a para muitas aplicações, como no estudo de superfícies e nas tecnologias de filmes finos.

Em um modelo típico, como o da Figura 2.4, a luz incidente é linearmente polarizada em um azimute conhecido, mas arbitrário, e a luz refletida é, na maioria das situações, elipticamente polarizada. Para a medição da elipse de polarização da luz refletida dá-se o nome de Elipsometria.



**Figura 2.4:** Luz incidente, com ângulo de incidência  $\phi$  e linearmente polarizada ( $\mathbf{E}_i$ ) de azimute arbitrário  $\theta$  é refletida da superfície  $S$  como luz elipticamente polarizada ( $\mathbf{E}_r$ ).  $\mathbf{p}$  e  $\mathbf{s}$  identificam as direções de polarização linear da luz, descritas na seção 2.3, e formam um sistema de coordenadas com a direção de propagação.

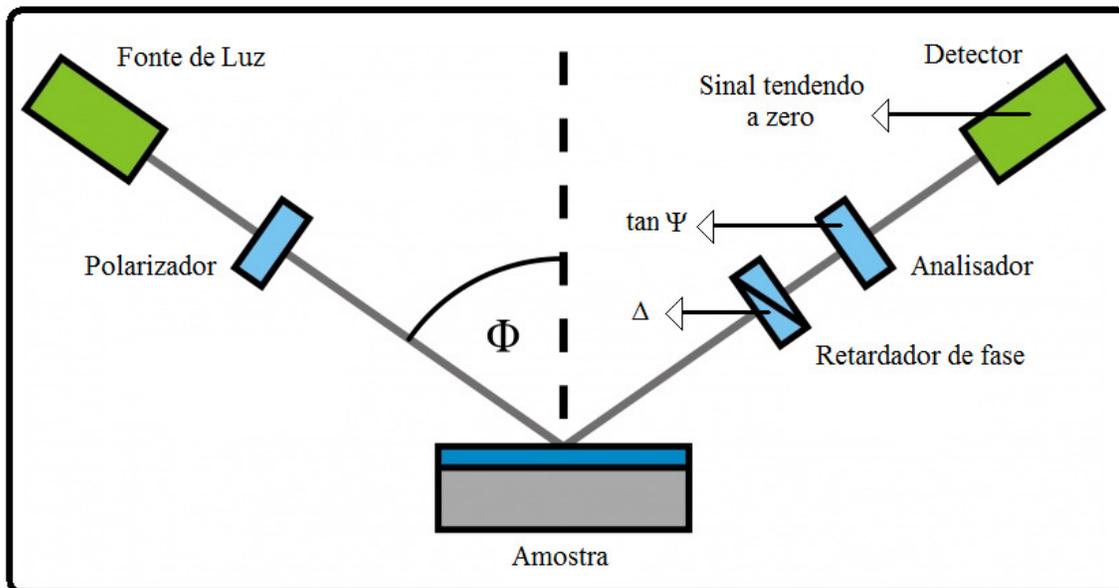
### 2.4.1. Aquisição de Dados Elipsométricos

A Elipsometria mede uma razão complexa das refletâncias para as componentes da luz refletida (polarizações  $s$  e  $p$ ) de um sistema, que vamos chamar aqui de  $\rho$ . Esta razão pode ser parametrizada pela componente da amplitude  $\Psi$  e pela diferença de fase  $\Delta$ . As amplitudes destas componentes, após a reflexão, podem ser normalizadas pelos seus valores iniciais. Vamos denominar estas amplitudes de  $R_s$  e  $R_p$  respectivamente para as polarizações  $s$  e  $p$ . Portanto, podemos definir  $\rho$  como [1]:

$$\rho = \frac{R_p}{R_s} = \tan(\Psi)e^{i\Delta}. \quad (2.2)$$

Na equação acima  $\tan(\Psi)$  é a razão de amplitude após a reflexão e  $\Delta$  é a diferença de fase entre  $R_s$  e  $R_p$ . Estes são os dados adquiridos em um elipsômetro espectral, como é mostrado abaixo na Figura 2.5 para um elipsômetro típico de extinção de luz, onde  $\Delta$  é obtido

no retardador de fase e  $\tan(\Psi)$  no analisador, dados obtidos na condição em que a refletância de luz é minimizada.



**Figura 2.5:** Esquema representando o funcionamento de um elipsômetro espectral de extinção típico. Luz polarizada incide sobre a amostra com um ângulo  $\Phi$  e, após ser refletida, busca-se minimizar o sinal de luz no detector pelos ajustes de polarização da luz no retardador de fase e no analisador.

#### 2.4.2. Análise de Dados Elipsométricos

No caso de materiais na forma de *bulk*, é possível obter-se os índices de refração diretamente dos seus dados elipsométricos  $\Psi$  e  $\Delta$  [7]. Entretanto, para materiais na forma de filmes finos, uma medida elipsométrica se torna uma medida indireta, isto é, em geral obter  $\Psi$  e  $\Delta$  não significa obter as constantes ópticas do filme em análise. Para obter estas constantes precisamos invocar um modelo teórico sobre a estrutura do material em estudo e sua interação com uma onda eletromagnética de polarização conhecida.

Isso acontece mesmo para um filme simples dielétrico, isotrópico e homogêneo, a resposta será obtida através de um ajuste numérico usando estimativas iniciais para as constantes ópticas do material (curva de dispersão ( $n(\lambda)$ ) e sua espessura física). Em outras palavras, é necessário um conhecimento prévio do material a ser analisado para a obtenção de suas constantes ópticas.

Neste trabalho, o modelo usado para calcular as curvas de dispersão dos filmes de titânia é o **Modelo de Cauchy**. Trata-se de uma relação polinomial, obtida empiricamente e com aplicabilidade na faixa da luz visível, entre o índice de refração e o comprimento de onda da luz para um determinado material dielétrico [8]:

$$n_f(\lambda) = A + \frac{B}{\lambda^2} + \frac{C}{\lambda^4} \quad (2.3)$$

Onde  $A$ ,  $B$  e  $C$  são constantes características de cada substância.

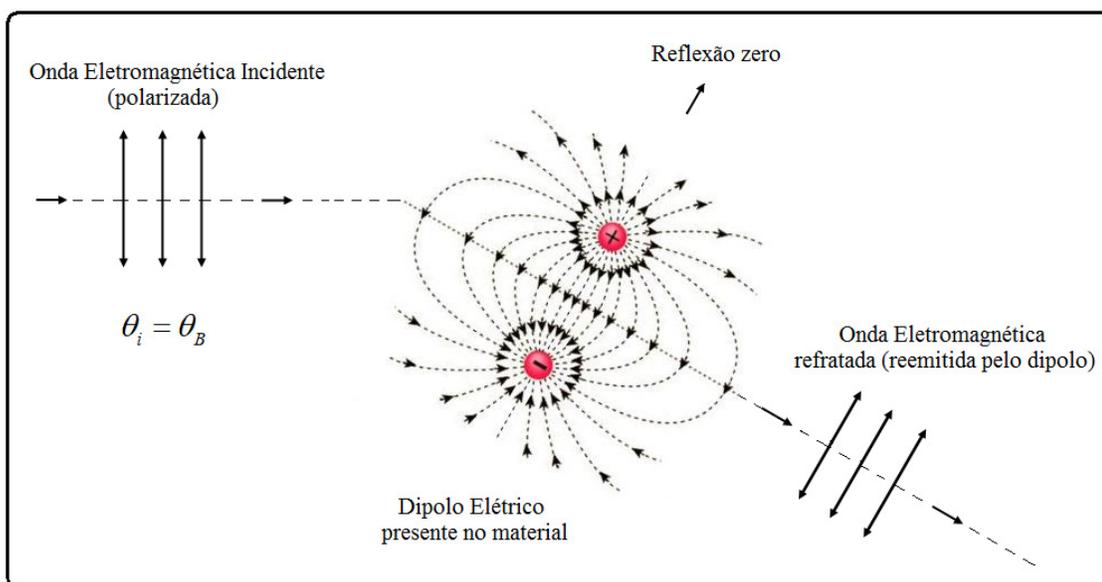
Os dados obtidos pelo Elipsômetro Espectral são carregados no software *WinElli II* que acompanha o equipamento. Este software permite-nos realizar simulações de curvas de dispersão para cada medida, através do modelo de Cauchy apresentado acima. Para isso são indicados valores iniciais (estimativas) para os coeficientes  $A$ ,  $B$  e  $C$ , assim como uma estimativa aproximada para a espessura física do filme ( $d$ ). Com estas informações o software é capaz de gerar uma curva de dispersão ( $n(\lambda)$ ) associada aos dados experimentais elipsométricos. Entretanto, como são quatro variáveis envolvidas ( $A$ ,  $B$ ,  $C$  e  $d$ ), o cálculo de ajuste pode convergir para uma solução falsa, a qual mesmo sendo falsa, pode ter um ajuste quase perfeito aos dados experimentais.

## 2.5. Ângulo de Brewster

Também conhecido como *ângulo de polarização*, o ângulo de Brewster tem esse nome devido ao trabalho de David Brewster no início do século XIX, onde ele descobriu empiricamente essa condição particular de incidência da luz numa superfície e seus efeitos na polarização da luz [9].

No ângulo de Brewster, as ondas de luz refratada e refletida por uma superfície que separa dois meios materiais com índices de refração distintos, formam um ângulo de exatamente 90 graus entre si. Particularmente, uma luz não polarizada, incidindo com este ângulo de incidência, terá sua componente  $p$  totalmente refratada, em consequência disso a luz refletida só possuirá componente  $s$ , ou seja, será uma onda polarizada.

O modelo teórico mais simples para explicar o fenômeno é considerar o material feito por dipolos elétricos, os quais são responsáveis pelo processo de espalhamento da luz: absorção do campo elétrico da luz, seguido pela reemissão do campo mantendo suas características de polarização. Sendo assim, a luz na interface (polarização  $p$ ) é absorvida por um dipolo do material que tenha a mesma orientação do campo. Após, o dipolo oscila e emite a onda de luz mantendo a mesma polarização ( $p$ ) que se propaga pelo material correspondendo à luz refratada. Por outro lado, um dipolo tem emissão zero exatamente na direção perpendicular a este campo emitido que, na condição de Brewster, corresponde precisamente à luz refletida pela interface, ou seja, não haveria luz com polarização  $p$  nessa direção. A Figura 2.6 mostra exatamente essa condição.



**Figura 2.6:** Luz polarizada (polarização  $p$ ) incide no respectivo ângulo de Brewster de um material. Dipolos elétricos presentes no material, e orientados conforme a polarização da luz incidente, absorvem a mesma e posteriormente a reemitem gerando a onda refratada. Entretanto, o dipolo tem emissão nula na direção transversal, correspondendo exatamente à direção esperada para a reflexão nesse caso.

Podemos obter uma relação entre o ângulo de Brewster ( $\theta_B$ ) e os índices de refração dos meios envolvidos através da Lei de Snell para a refração de luz. Se  $n_1$  for o índice de

refração do meio de incidência da luz e  $n_2$  for o índice de refração do material sobre o qual a luz está incidindo, então pela Lei de Snell temos a seguinte relação:

$$n_1 \sin \theta_B = n_2 \sin \theta_2 \quad (2.4)$$

Onde  $\theta_2$  é o ângulo de refração.

Além disso, na condição de Brewster, temos  $\sin \theta_2 = \sin(90 - \theta_B) = \cos \theta_B$ .

Substituindo este resultado na equação 2.4 temos a seguinte equação:

$$n_2 = n_1 \tan \theta_B \quad (2.5)$$

Se o meio de incidência da luz for o ar, cujo índice de refração é aproximadamente igual a 1, a equação para o ângulo de Brewster fica dependendo apenas do índice de refração do material:

$$n_2 = \tan \theta_B \quad (2.6)$$

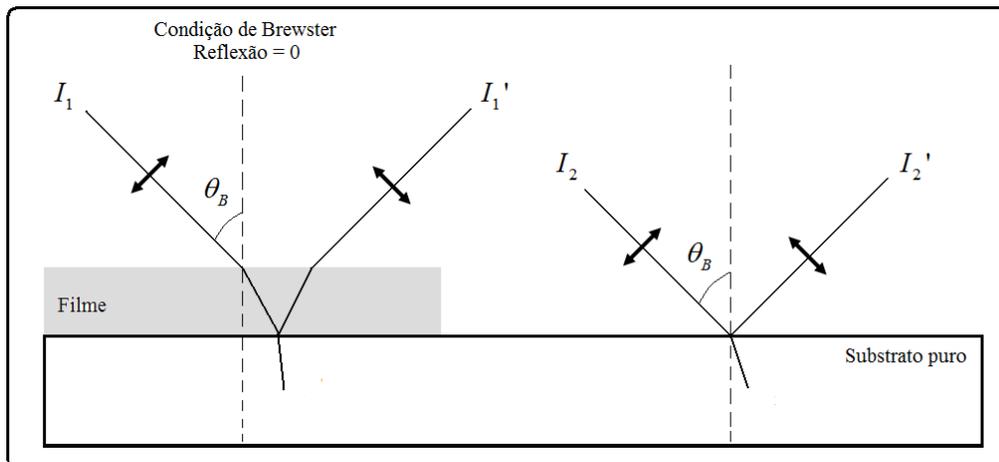
Este resultado permite a obtenção direta do índice de refração do material na forma *bulk*.

## 2.6. Técnica de Abelès

O conceito da técnica é bastante simples. Trata-se de uma medida comparativa entre refletâncias de luz polarizada (polarização  $p$ ): a luz refletida pelo conjunto *filme-substrato* é diretamente comparada com a luz refletida pelo substrato sem filme (ver Figura 2.7). Para isso o filme a ser analisado é depositado apenas em metade do substrato, permitindo assim a realização destas medidas comparativas através do descolamento da amostra. Normalmente, os valores de intensidade de luz refletida são diferentes entre si para um ângulo de incidência  $\theta$  qualquer, mas, na condição de Brewster ( $\theta = \theta_B$ ), estes valores são iguais.

Essa igualdade aparece devido ao fato de que o feixe incidente acaba sendo totalmente refratado na interface ar-filme, cujos índices de refração vamos chamar de  $n_0$  e  $n_F$  respectivamente. Desta forma, em que o filme possua uma absorção de luz desprezível, a amplitude de luz que chega à interface filme-substrato (índices  $n_F$  e  $n_{sub}$ ) será a mesma que a

do feixe incidente que chega diretamente à interface ar-substrato (índices  $n_0$  e  $n_{sub}$ ). Como consequência, na condição de Brewster, as amplitudes de luz refletidas por estas interfaces são as mesmas também.



**Figura 2.7:** Na Técnica de Abelès, luz p-polarizada incidindo no filme na condição de Brewster do mesmo. Nessa situação a luz é totalmente refratada na interface ar-filme, fazendo com que  $I_1' = I_2'$ .

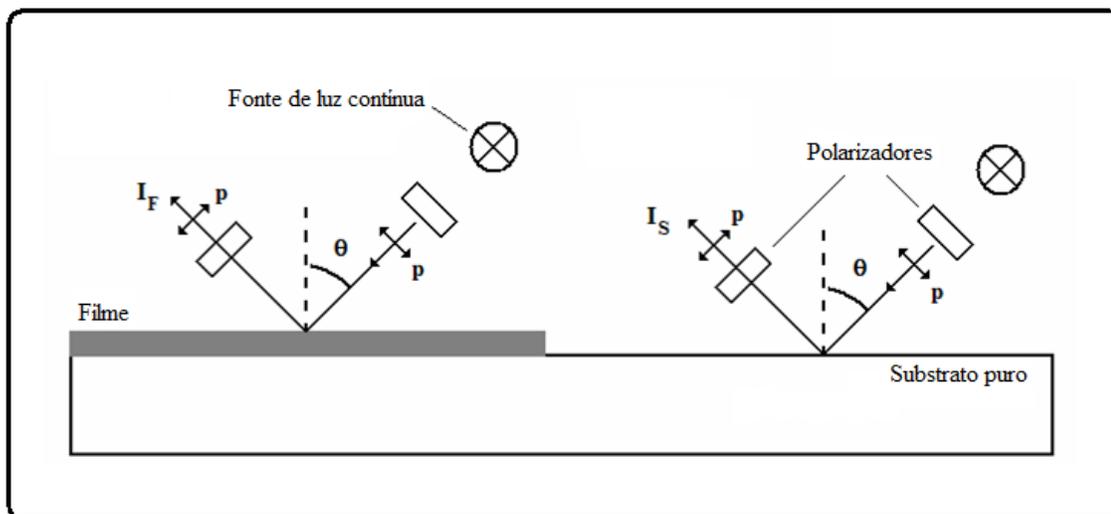
Deve-se ressaltar que esta condição de igualdade de refletâncias também pode ocorrer fora da condição de Brewster, oriunda do efeito da interferência entre as frentes de onda no filme fino, condição conhecida como *absent layer* (“camada ausente”). Esta condição de interferência totalmente construtiva faz com que a luz refletida pelo filme tenha exatamente a mesma amplitude que a refletida apenas pelo substrato, similar ao que ocorre na condição de Brewster. Entretanto, esta condição de *absent layer* ocorre para ambas às polarizações (*s* e *p*), e em diversos ângulos de incidência da luz, sendo função da espessura óptica do filme (produto da espessura física pelo índice de refração). Devido a isso, pode-se, com relativa facilidade, distinguir o ângulo de Brewster das situações de *absent layer*, uma vez que a condição de Brewster ocorre apenas na polarização *p*. Filmes com uma espessura óptica muito baixa não apresentam tal condição, mas conforme a espessura aumenta o número de ângulos em que ocorre a condição de *absent layer* também aumenta proporcionalmente.

A técnica de Abelès pode alcançar uma precisão na segunda casa decimal para o índice de refração superficial. Se uma precisão maior é necessária, há maneiras de aumentar essa precisão, utilizando interpolação matemática ou até mesmo através da utilização de uma variante experimental da técnica, denominada extensão de Hacskaylo, na qual a luz utilizada na análise do material é composta em grande parte por luz com polarização  $p$  e uma pequena componente de polarização transversal  $s$ . Entretanto, essa extensão da técnica não é o objetivo do trabalho, mais detalhes sobre a mesma podem ser encontrados na seguinte referência [10].

## 2.7. Técnica Polarimétrica Espectral (TPE)

Na técnica original de Abelès, o comprimento de onda da luz usado na medida era fixo e buscava-se o ângulo de incidência no qual as refletâncias eram iguais para o filme e o substrato.

Já na TPE escolhem-se ângulos arbitrários para a incidência da luz e neles varre-se o espectro da luz, coletando os valores de refletância correspondentes para a reflexão na região do filme e do substrato, conforme mostra a Figura 2.8.



**Figura 2.8:** Luz de uma fonte de espectro contínuo está polarizada (polarização  $p$ ) e incide no filme ou no substrato puro com um ângulo de incidência  $\theta$ . As intensidades de luz refletidas pelo filme ( $I_F$ ) e pelo substrato ( $I_S$ ) são comparadas para diversos comprimentos de onda. Para um comprimento de onda específico estas intensidades serão as mesmas.

Com isso, são obtidas as curvas de intensidade de luz refletida por comprimento de onda, para o filme e para o substrato, nestes ângulos de incidência da luz. Para cada ângulo, este será o correspondente ângulo de Brewster do filme em um específico comprimento de onda da luz, o qual será determinado pela intersecção das duas curvas de intensidade de luz refletida. Com o ângulo de Brewster determinado, usa-se a equação 2.6, obtendo-se o correspondente índice de refração para aquele respectivo comprimento de onda:

$$n_2(\lambda) = \tan \theta_B(\lambda) \quad (2.7)$$

## Capítulo 3: Metodologia

### 3.1. Elipsômetro Espectral SOPRA GES-5E

Este equipamento é basicamente uma plataforma óptica capaz de realizar medidas de Elipsometria e medidas de intensidade de luz refletida (medidas fotométricas).

O equipamento possui um goniômetro automático, o que nos permite selecionar o ângulo de incidência da medida ( $10^\circ - 90^\circ$ ) diretamente pelo computador. Também possui um *microspot* automático que permite focalizar o feixe luminoso em uma área muito pequena da amostra.

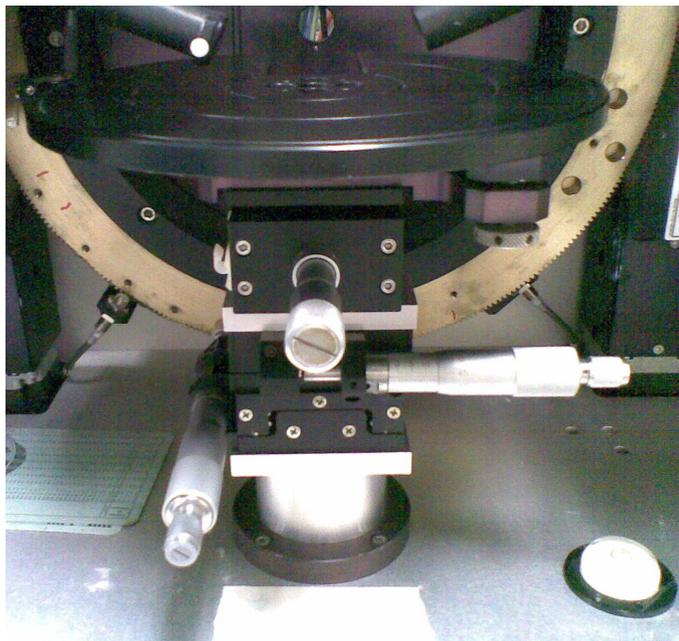
Nas medidas elipsométricas, o equipamento funcionou em seu modo padrão, com os polarizadores em rotação contínua (frequência de 5 Hz). Já para as medidas de TPE, o equipamento funcionou em seu modo fotométrico, ou seja, o polarizador foi mantido fixo, deixando apenas a polarização  $p$  da luz passar. Uma imagem do equipamento aparece abaixo.



**Figura 3.1:** Elipsômetro Espectral SOPRA GES-5E (Laboratório de Laser e Óptica – UFRGS)

### 3.2. Desenvolvimento de Instrumentação

O Elipsômetro Espectral SOPRA GES-5E possui um transladador de altura ( $Z$ ) e dois parafusos de ajuste de ângulo na base do seu porta-amostras, os quais são utilizados no alinhamento do feixe de luz sobre a amostra para as medidas elipsométricas. Entretanto estes ajustes eram insuficientes para possibilitar medidas confiáveis usando a TPE. Sendo assim, foi projetada uma nova base para o porta-amostras, na qual foram adaptados dois transladadores com parafusos graduados para a leitura de posição da amostra. A nova base possibilitou uma movimentação da amostra de forma suave e controlada no plano  $XY$ , garantindo que as medidas fossem sempre realizadas na mesma posição na amostra (ver Figura 3.2).



**Figura 3.2:** Base que foi construída e adaptada ao equipamento para a realização das medidas de TPE. Dois transladadores adicionais foram acoplados, permitindo um deslocamento suave da amostra nos eixos  $X$  e  $Y$ . A amostra fica posicionada no centro do disco preto localizado na parte superior da imagem.

### 3.3. Fabricação de Amostras

Para testar os princípios da técnica e sua viabilidade de utilização no elipsômetro espectral, buscou-se uma amostra de fácil fabricação e que fosse isotrópica, dielétrica e

homogênea, características requeridas para a TPE. Sendo assim, optou-se pelo uso de filmes de fotorresiste sobre vidro. O fotorresiste é um material sensível à luz, que é utilizado em vários processos industriais, como na fotolitografia, por exemplo. Estes filmes foram fabricados pelo processo de *spin-coating*. Neste processo a superfície do substrato é coberta por uma solução de *fotorresiste + solvente* e, posteriormente, as amostras são postas a girar em um *spinner*. Velocidades, tempos de rotação e razões de fotorresiste/solvente distintas foram testados com a finalidade de otimizar a qualidade superficial dos filmes, assim como obter um conjunto de filmes com espessuras significativamente distintas entre si. Após o processo, as amostras foram levadas a um forno para a evaporação completa do solvente e solidificação do filme. Finalmente, metade da superfície do substrato coberta pelo filme foi limpa com acetona, removendo completamente o filme e permitindo sua caracterização pela TPE. Os resultados destes testes iniciais não serão apresentados no trabalho.

O segundo conjunto de amostras fabricadas foram filmes de Titânia ( $\text{TiO}_2$ ) sobre substrato de Silício polido. Deste segundo conjunto saíram as amostras utilizadas para comprovar a TPE neste trabalho. Estas amostras foram produzidas utilizando um *RF-sputtering* da empresa Leybold, no qual um feixe de íons colide no alvo do material a ser depositado. O material então é ejetado, vindo a se depositar na superfície do substrato que fica localizado acima do alvo. O processo é realizado numa câmara em baixa pressão, tendo um livre caminho médio bem elevado. Para poder realizar as medidas de TPE, metade da superfície dos substratos de silício foi protegida durante o processo de *sputtering*, criando uma região sem filme no substrato.

### **3.4. Caracterização das Amostras**

#### **3.4.1. TPE**

Com o Elipsômetro Espectral devidamente calibrado e operando no modo Fotométrico, no qual são realizadas apenas medidas de intensidade da luz refletida (polarização  $p$ ), foram feitas medidas nas amostras em diversos ângulos de incidência da luz.

Para cada ângulo de incidência, primeiramente foi medida a luz refletida na parte depositada com filme, sendo depois a amostra transladada para a região do substrato sem

filme. Comparando as curvas de intensidade de luz refletida das duas regiões, foi possível determinar os respectivos comprimentos de onda nos quais as intensidades de reflexão se igualam para cada ângulo de incidência escolhido (como explicado na Seção 2.7). A partir destes comprimentos de onda  $\lambda$ , utilizando a equação 2.7, foi possível calcular os respectivos índices de refração.

Finalmente, o modelo de Cauchy (Equação 2.3) foi ajustado a esse conjunto de índices de refração, obtendo assim os respectivos coeficientes A, B e C para os filmes de TiO<sub>2</sub>.

### 3.4.2. Elipsometria Espectral

As medidas de elipsometria foram realizadas num ângulo de incidência de 75 graus e na faixa de 0,4 – 0,7  $\mu\text{m}$ . Primeiramente foi medido o substrato de silício e suas curvas de dispersão foram obtidas diretamente pelo software *WinElli* (ver seção 2.4.2).

Após, os filmes de TiO<sub>2</sub> foram medidos e para cada uma das amostras, a respectiva curva de dispersão obtida por TPE (coeficientes A, B e C) foi utilizada como primeira estimativa no modelo de ajuste na Elipsometria Espectral, junto com as curvas de dispersão do substrato. Como mostrado nos **Resultados** (Capítulo 4), isso possibilitou a exclusão de falsas soluções e a consequente caracterização acurada dos filmes finos isotrópicos e homogêneos.

# Capítulo 4: Resultados

## 4.1. Amostras de Titânia

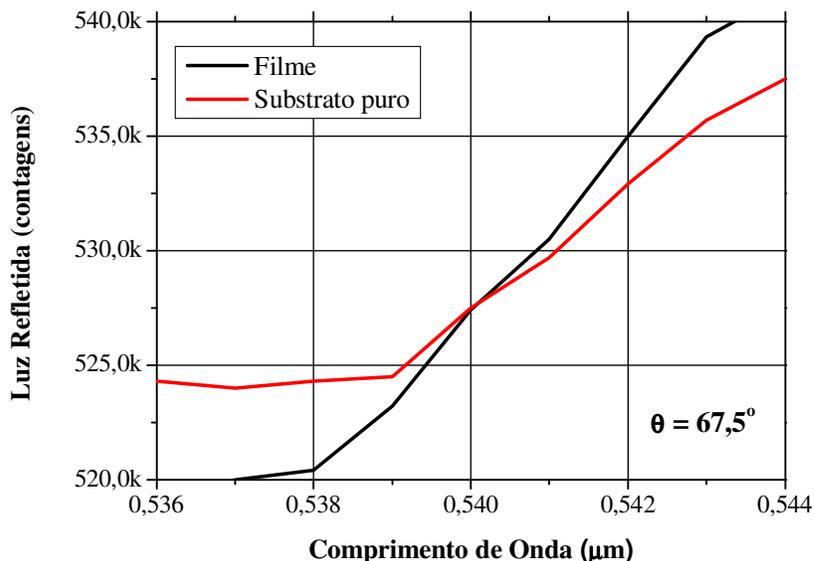
As amostras de titânia cujos resultados serão apresentados neste trabalho serão nomeadas da seguinte maneira:

- **Amostra 1:** foi preparada para ser um filme bastante fino (da ordem de dezenas de nanômetros) com uma hora de deposição via *sputtering* usando 250W de potência. Como este filme é bastante fino, espera-se apenas uma solução elipsométrica e sem presença de *absent layer* que ocorre em filmes mais espessos, que então pode ser usada como prova do método.
- **Amostra 2:** sua deposição durou dez horas com potência de 250W e uma espessura estimada de cerca de 200 nm (mesmo assim, não se estima que haja muitos ângulos no qual ocorra o efeito de *absent layer*). Para diminuir as inhomogeneidades no filme, a amostra foi mantida em rotação durante a deposição (12 rpm) e o substrato foi aquecido a 80°C. Esta amostra foi produzida com o intuito de ter várias soluções elipsométricas, para que então pudéssemos usar os coeficientes obtidos nos resultados de TPE com o objetivo de eliminar as soluções falsas obtidas pela Elipsometria Espectral.

## 4.2. Medidas

Primeiro, via Elipsometria Espectral, obtivemos a curva de dispersão da Amostra 1 em um intervalo de comprimentos de onda de 0,35 – 0,85  $\mu\text{m}$ , para o ângulo de incidência  $\theta = 75^\circ$ . Posteriormente, com os polarizadores configurados para polarização *p* (modo fotométrico), as medidas de TPE foram realizadas no intervalo de 0,4 – 0,6  $\mu\text{m}$  (passo de 0,001  $\mu\text{m}$ ) entre os ângulos de 67,5 até 69°, com passo de 0,25°.

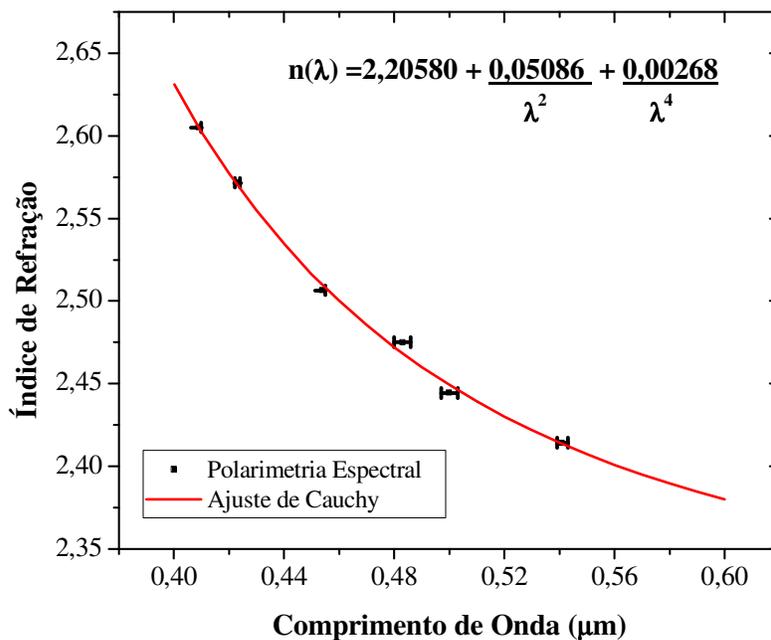
A Figura 4.1 mostra a intersecção entre os espectros de reflexão do filme e do substrato puro, para a amostra 1, no ângulo de incidência  $\theta = 67,5^\circ$ .



**Figura 4.1:** Intersecção entre os espectros de reflexão do filme e do substrato para a amostra 1 no ângulo de incidência  $\theta = 67,5^\circ$ . A intersecção das curvas ocorre próximo a  $\lambda = 0,540 \mu\text{m}$ .

O mesmo procedimento se repete para os outros ângulos do intervalo, permitindo obter os respectivos índices de refração para diversos comprimentos de onda (Equação 2.7) e por fim o ajuste de uma curva de Cauchy a esses valores (Equação 2.3). Para a amostra 1, os coeficientes de Cauchy determinados por este ajuste matemático são:  $A = 2,20580$ ,  $B = 0,05086$  e  $C = 0,00268$ . A curva resultante é mostrada abaixo na Figura 4.2.

Os coeficientes obtidos através do ajuste dos dados da TPE (dispostos acima), foram então usados como estimativa inicial no software de modelamento do Elipsômetro. Como resultado imediato, a curva de dispersão converge rapidamente para uma solução que se ajusta à curva experimental com um coeficiente de determinação ( $R^2$ ) de 0,9952, ou seja, com ótima precisão. A espessura do filme é  $d = 0,0424 \pm 0,001 \mu\text{m}$  e os coeficientes de Cauchy são  $A = 2,448 \pm 0,005$ ,  $B = -0,0845 \pm 0,0006$  e  $C = 0,01921 \pm 0,00008$ .



**Figura 4.2:** Dados obtidos com a TPE e o ajuste de Cauchy para a amostra 1.

Uma comparação entre os valores de índices de refração do filme obtidos pela TPE e por Elipsometria Espectral é mostrada na Tabela 4.1 para alguns comprimentos de onda.

**Tabela 4.1**

<b>Índice de Refração</b>		
$\lambda$ ( $\mu\text{m}$ )	TPE ( $\pm 0,03$ )	Elipsometria
0,425	2,57	$2,57 \pm 0,01$
0,450	2,52	$2,50 \pm 0,01$
0,475	2,48	$2,451 \pm 0,009$
0,500	2,45	$2,417 \pm 0,008$
0,525	2,43	$2,394 \pm 0,008$
0,550	2,41	$2,379 \pm 0,007$
0,575	2,39	$2,368 \pm 0,007$
0,600	2,38	$2,362 \pm 0,007$

A Tabela 4.1 mostra uma comparação de valores de índices de refração para o filme de titânia da amostra 1 obtidos via TPE e via Elipsometria.

Este filme mais fino de  $\text{TiO}_2$  permite uma única solução elipsométrica para cada comprimento de onda, que coincide com a do método proposto, considerando as incertezas nas medições é claro, mas corroborando sua validade.

Os mesmos procedimentos de medida foram realizados com a amostra 2. As medidas polarimétricas foram realizadas com ângulos de incidência entre  $66^\circ$  e  $69^\circ$ , com passo de  $0,25^\circ$ , no intervalo de comprimentos de onda de  $0,4 - 0,65 \mu\text{m}$ , com passo de  $0,001 \mu\text{m}$ . Numa primeira abordagem, sem o uso da curva de dispersão obtida com a TPE, o software de análise do elipsômetro (*WinElli II*) gerou duas soluções com diferentes conjuntos de coeficientes de Cauchy e espessuras, conforme mostram as colunas 2 e 3 da Tabela 4.2. É importante notar que ambas as soluções possuem um coeficiente de determinação maior do que 0,95, indicando que ambas as soluções são ótimos ajustes aos dados experimentais. Isso mostra a complexidade na análise dos resultados elipsométricos e também a dificuldade em avaliar corretamente as constantes ópticas do filme.

**Tabela 4.2:**

Coeficientes de Cauchy	Apenas Elipsometria		TPE/Elipsometria	
	Solução 1	Solução 2	Estimativa da TPE	Elipsometria
<b>A</b>	$2,197 \pm 0,003$	$2,951 \pm 0,003$	2,05410	$2,198 \pm 0,003$
<b>B</b>	$0,0019 \pm 0,0004$	$-0,2588 \pm 0,0006$	0,01047	$0,0018 \pm 0,0005$
<b>C</b>	$0,00794 \pm 0,00009$	$0,02343 \pm 0,00009$	0,01623	$0,00795 \pm 0,00009$
<b>d (<math>\mu\text{m}</math>)</b>	$0,1954 \pm 0,0003$	$0,3211 \pm 0,0005$	Não	$0,1954 \pm 0,0003$
<b>R<sup>2</sup></b>	0,992	0,959	Não	0,992

A Tabela 4.2 mostra as soluções obtidas para a amostra 2 usando duas abordagens, com e sem a estimativa polarimétrica.

Para remover a solução falsa, na segunda abordagem, a curva de dispersão obtida através do método polarimétrico foi utilizada como uma estimativa inicial para o

modelamento com o software do elipsômetro. Feito isto, o software acaba convergindo para uma única solução, aquela com  $R^2 = 0,992$  (ver coluna 5 da Tabela 4.2). Esta curva concorda muito bem com a curva de dispersão obtida na primeira abordagem (ver coluna 2 da mesma tabela). Além disso, ambas as abordagens indicam espessuras idênticas para o filme ( $d = 0,1954 \pm 0,0003 \mu\text{m}$ ).

Os resultados demonstram a validade da técnica na exclusão das soluções falsas obtidas na Elipsometria. Entretanto, há limitações de aplicabilidade da TPE, principalmente quando os filmes a serem caracterizados não são homogêneos (apresentam variações no índice de refração com a profundidade).

Como as medidas de TPE se baseiam em medidas de ângulo de Brewster, estas são muito mais sensíveis à região de interface ar/filme se comparadas a uma medida elipsométrica, na qual a luz interage ao longo de todo o filme.

Portanto, no caso de filmes inhomogêneos, os coeficientes de Cauchy obtidos pela TPE podem ser consideravelmente distintos da curva de dispersão real do material que é obtida por elipsometria. Nesse caso, a curva de dispersão corresponde a um índice de refração efetivo, que leva em conta todas as variações de densidade e composição ao longo de toda profundidade do filme. Sendo assim, o uso da TPE para esse tipo de filme não seria indicado.

Outras limitações são intrínsecas da própria Elipsometria, como amostras com muito espalhamento de luz ou que requerem modelos muito complexos de análise estrutural (filmes anisotrópicos, por exemplo).

## Capítulo 5: Conclusões

Neste trabalho foi apresentado um método que utiliza uma técnica polarimétrica espectral (TPE), combinada com elipsometria espectral, para obter acuradamente as constantes ópticas de filmes finos dielétricos isotrópicos e homogêneos, eliminando assim soluções falsas que usualmente são obtidas por Elipsometria.

Primeiramente medidas polarimétricas são realizadas obtendo-se a curva de dispersão do filme independentemente de sua espessura física. Os coeficientes de Cauchy desta curva são utilizados no software de análise do elipsômetro como estimativa inicial para o cálculo de ajuste, o que leva à convergência deste ajuste para a resposta correta.

A validade do método proposto foi demonstrada inicialmente através de medidas em um filme de  $\text{TiO}_2$  de 42 nm de espessura, para o qual a Elipsometria converge para uma solução apenas para a curva de dispersão, que é a mesma obtida usando apenas a TPE.

A segunda demonstração foi caracterizando um filme mais espesso, de 195 nm de espessura. Nesse caso, a Elipsometria já fornece duas soluções plausíveis com um ajuste superior a 95% em ambas, o que dificulta a identificação da solução correta. Com o uso dos coeficientes obtidos pela TPE, o ajuste converge diretamente para a solução correta, demonstrando assim a utilidade deste método.

O método pode ser empregado mesmo para filmes com espessura óptica mais elevada, onde o efeito da interferência dentro do filme pode gerar condições de *absent layer*. Isso é possível porque a condição de Brewster é exclusiva para polarização  $p$ , podendo assim ser diferenciada das situações de *absent layer* que ocorrem nesses filmes mais espessos.

Além dessa versatilidade na caracterização de filmes com espessuras variadas, outra vantagem importante de combinar a TPE com medidas elipsométricas é que ambas as técnicas podem ser realizadas na mesma montagem experimental, ou seja, as medidas podem ser realizadas em sequência, sem remover a amostra, garantindo assim uma caracterização na mesma posição da amostra, o que aumenta a confiabilidade dos resultados obtidos.

Como perspectivas futuras, o método pode ainda ser aperfeiçoado em termos de precisão estendendo o aprimoramento de HacsKaylo para uma forma espectral. Além disso, a TPE também poderia ser estendida para situações envolvendo filmes de multicamadas. Similarmente ao que ocorre quando se utiliza elipsometria em filmes multicamadas, medidas em sequência podem ser realizadas após a deposição de cada camada do filme.

# Referências

- [1] MULLER, R. H. **Definitions and Conventions in Ellipsometry**, Surface Science, p.14-33, vol.16, 1969.
- [2] ABELÈS, F. **Recherches sur la propagation des ondes électromagnétiques sinusoidales dans les milieux stratifiés. Application aux couches minces**, Thèse (Doctorat en Physique) - Faculte des Sciences - Université de Paris, Paris 1949.
- [3] TIEN, P.K.; ULRICH, R. **Theory of prism-film coupler and thin-film light guides**. J. Opt. Soc. Am., vol.60, p.1325-1337, Oct. 1970.
- [4] SWANEPOEL, R. **Determination of the thickness and optical constants of amorphous silicon**. J. Phys. E: Sci. Instrum., Bristol, v. 16, n. 12, p. 1214-1222, Dec. 1983.
- [5] BORN, M.; WOLF, E. **Principles of optics: electromagnetic theory of propagation, interference and diffraction of light**. 6. ed. Cambridge: Cambridge University Press, 1997. 870 p.
- [6] FOWLES, G. R., **Introduction to Modern Optics**, Dover: New York, 1975.
- [7] ZAININGER, K. H.; REVESZ, A. G. **Ellipsometry: a valuable tool in surface research**. RCA Rev., Princeton, v. 25, n. 1, p. 85-115, Mar. 1964.
- [8] PEREIRA, M. B.; BARRETO, B. J.; HOROWITZ, F. **Spectral polarimetry technique as a complementary tool to ellipsometry of dielectric films**, Appl. Opt. 50, C420-C423, 2011.
- [9] BREWSTER, D., **On the law which regulate the polarisation of light by reflexion from transparent bodies**, Philos. Trans. R. Soc. London. 105, 125 (1815).
- [10] HACSKAYLO, M. J., **Determination of the refractive index of thin dielectric films**, J. Opt. Soc. Am. 54, 198-203 (1964).