

CARACTÉRISATION OPTIQUE DES COUCHES MINCES PAR ELLIPSOMÈTRE DE MUELLER

B. BAKHOUCHE, A. BENIAICHE et A. BENCHEIKH

Laboratoire d'Optique Appliquée, D.O.M.P., Université Ferhat Abbas, 19000 Sétif

E-mail : t.bakhouche@yahoo.fr

RÉSUMÉ : L'ellipsométrie est une technique optique d'analyse des surfaces, fondée sur la mesure du changement de l'état de polarisation de la lumière laser après réflexion sur une surface plane. C'est une technique non destructive et très sensible aux aspérités de la surface ou de l'interface considérée.

Dans notre travail, nous avons voulu tester la possibilité d'utiliser une nouvelle technique ellipsométrique dite ellipsomètre de Mueller pour la caractérisation des propriétés optiques des films de dioxyde de titane (TiO_2), en utilisant un faisceau laser polarisé. Nous présentons les procédures expérimentales permettant d'obtenir des matrices de Mueller, et l'exploitation de cette matrice pour la détermination des paramètres ellipsométriques ψ et Δ , ainsi que les constantes optiques n et k .

MOTS-CLÉS : ellipsomètre de Mueller, couches minces, matrice de Mueller, dioxyde de titane

1. Introduction

L'ellipsométrie est une méthode de caractérisation optique, basée sur l'analyse de l'état de polarisation (souvent elliptique) d'une lumière initialement polarisée après sa réflexion sur une surface [1]. Son principe a été découvert il y a plus d'un siècle [2] et a trouvé un essor récent grâce à l'utilisation des micro-ordinateurs et de la commande électronique des moteurs, ce qui a permis l'automatisation et l'optimisation des mesures. Les principaux atouts de cette technique sont son caractère non destructif qui autorise des mesures in situ; sa sensibilité qui permet de mesurer des épaisseurs jusqu'à une fraction de couche moléculaires, ainsi que la possibilité de suivre la croissance d'une couche en temps réel.

Les ellipsomètres conventionnels ne s'intéressent qu'à la lumière réfléchiée par l'échantillon. Ils permettent la mesure des quantités ellipsométriques classiques l'azimut ψ et le déphasage Δ qui ne déterminent que de façon relative les caractéristiques de l'échantillon, qui apparaissent lors du [3] passage de la lumière d'un milieu vers un autre ou pendant la réflexion sur celui-ci.

Ces éléments sont également limités par le type d'échantillon qu'ils peuvent étudier, la structure (couches minces ou matériaux massifs), ou aussi d'autres limitations (angle d'incidence, longueur d'onde...etc).

Une détermination plus complète de la matrice caractérisant les propriétés optiques d'un échantillon nécessite l'utilisation d'une nouvelle méthode ellipsométrique appelée ellipsomètre de Mueller, permettant non seulement de traiter les ondes polarisées mais également celles qui sont dépolariées tout en étant reliées à des grandeurs à dimension énergétique et donc mesurable, il permet aussi d'effectuer des mesures en réflexion et en

transmission. On peut, grâce à cet ellipsomètre, étudier des échantillons isotropes ou anisotropes.

2.Principe de base de l’ellipsométrie

Considérons une onde électromagnétique plane polarisée arrivant [2] sur l'interface, supposée plane, entre deux milieux (0) et (1) (figure (1)). Une partie de l'onde est transmise, et une autre partie est réfléchie. Le champ électrique de l'onde incidente peut être écrit comme la somme de deux composantes orthogonales: la première, appelée polarisation **p**, d'amplitude complexe E_{jp} , est dans le plan d'incidence et la seconde, appelée polarisation **S**, d'amplitude complexe E_{js} , est orthogonale au plan d'incidence [§].

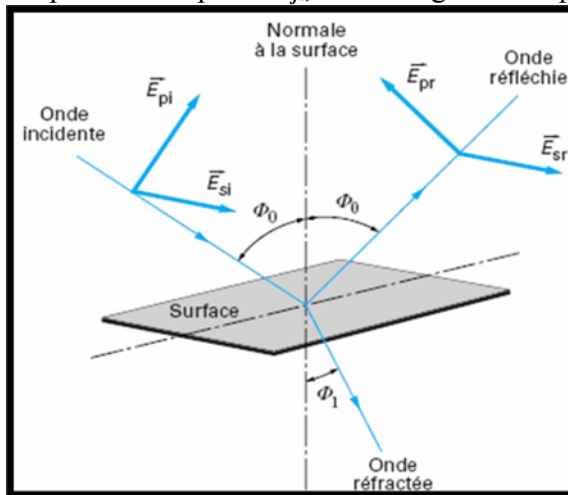


Figure 1 : Réflexion sur une interface de Fresnel

La modification du champ électrique après réflexion sur l'échantillon peut être représentée par deux coefficients agissant sur chacune des composantes du champ :

- le coefficient de réflexion de l'échantillon pour une polarisation parallèle au plan d'incidence est :

$$r_p = \frac{E_{pr}}{E_{pi}} = |r_p| \exp(j\delta_p) \tag{1}$$

- le coefficient de réflexion de l'échantillon pour une polarisation perpendiculaire au plan d'incidence est :

$$r_s = \frac{E_{sr}}{E_{si}} = |r_s| \exp(j\delta_s) \tag{2}$$

Les deux coefficients r_p et r_s sont complexes. Leur module $|r_p|, |r_s|$ représente la modification apportée à l'amplitude de la composante du champ, et leur phase, δ_p et δ_s , le retard introduit par la réflexion.

En pratique, la quantité mesurée est le rapport de ces deux coefficients, qui s'exprime sous la forme :

$$\frac{r_p}{r_s} = \left| \frac{r_p}{r_s} \right| e^{j(\delta_{rs} - \delta_{rp})} = \tan\psi \exp(j\Delta) = \rho \tag{3}$$

avec $\tan\psi = \left| \frac{r_p}{r_s} \right|$ rapport des modules,

Δ différence de phase introduite par la réflexion.

3. Principes théoriques d'un ellipsomètre de Mueller

Nous avons opté pour une technique [3,4] s'appuyant sur les travaux développés à l'origine par Soleillet et Mueller. Il existe plusieurs formalismes pour étudier et caractériser les différents états de polarisation de la lumière, dont ceux de Jones et Stokes. Un vecteur de Stokes a quatre composantes homogènes à des intensités lumineuses.

Si la lumière est définie par un vecteur de Stokes, le milieu qui interagit est caractérisé par une matrice de Mueller (M) ; c'est est une matrice 4*4 dont les [5,6] termes nous renseignent sur l'interaction lumière-matière. Elle permet de passer du vecteur de Stokes d'entrée (E_e) au vecteur de Stokes de sortie (E_s) par la relation : $\vec{E}_s = M \vec{E}_e$

3.1 Matériel et méthode

Le montage expérimental utilisé pour la détermination de la matrice de Mueller de notre échantillon (TiO₂) est représenté par la figure III.2. La source utilisée est une lumière laser He-Ne de longueur d'onde ($\lambda=632.28$ nm). Le faisceau sortant de la source, traverse initialement un polariseur P₁ (sert à maintenir l'état de polarisation du laser), puis une lame quart d'onde L₁ (utilisée pour modifier l'état de polarisation de la lumière incidente). Le faisceau lumineux traversant la lame quart d'onde L₁, tombe ensuite sur l'échantillon. L'intensité réfléchie par ce dernier traverse une seconde lame quart d'onde L₂ puis un deuxième polariseur P₂ (Figure 2).

Un photodétecteur est enfin placé pour capter le signal lumineux sortant du deuxième polariseur. Le polariseur d'entrée est orienté verticalement (référence du système) tandis que le polariseur de sortie est orienté horizontalement. Les lames quart d'onde d'entrée et de sortie sont orientées respectivement de (θ) et (θ') par rapport à la verticale.

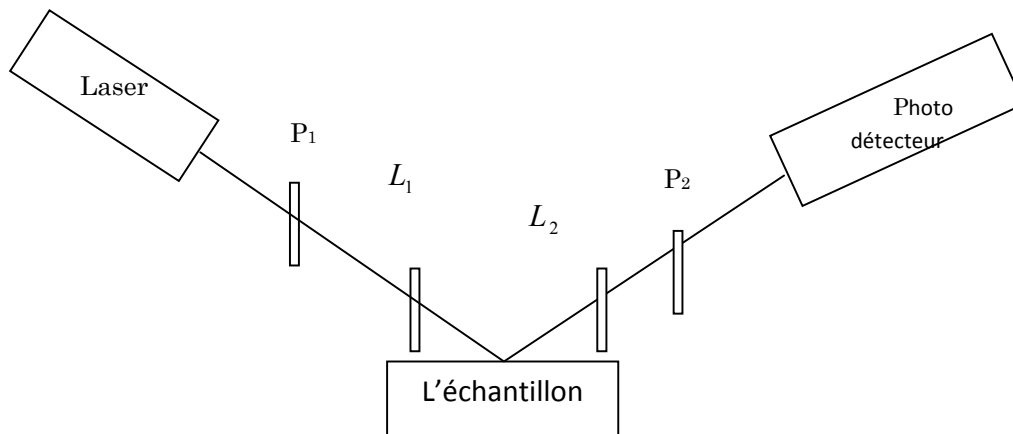


Figure 2 : Schéma du montage expérimental.

3.2 Principe de mesure :

Le principe d'obtention de la matrice de Mueller à l'aide d'un tel ellipsomètre est le suivant :

La matrice de Mueller d'une surface réfléchissante est donnée par l'expression suivante[7] :

$$M = \begin{bmatrix} \text{tg}^2\Psi + 1 & \text{tg}^2\Psi - 1 & 0 & 0 \\ \text{tg}^2\Psi - 1 & \text{tg}^2\Psi + 1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 2\text{tg}\Psi\cos\Delta & -2\text{tg}\Psi\sin\Delta \\ 0 & 0 & 2\text{tg}\Psi\sin\Delta & 2\text{tg}\Psi\cos\Delta \end{bmatrix}$$

Cette matrice peut prendre la forme suivante :

$$M = \begin{bmatrix} m_1 & m_2 & 0 & 0 \\ m_2 & m_1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 2m_3 & -2m_4 \\ 0 & 0 & 2m_4 & 2m_3 \end{bmatrix} \tag{4}$$

Le vecteur de sortie de Stokes (\vec{S}') qui émerge de P₂ peut être exprimé par le produit des matrices suivantes :

$$\vec{S}' = [P_2][L_2][M][L_1][P_1]\vec{S} \tag{5}$$

[M] est la matrice de Mueller que l'on cherche à déterminer, [P₂], [L₂], [L₁] et [P₁] est les matrices de Mueller de chacun des composants qui constituent le polarimètre et \vec{S} est le vecteur de Stokes de la lumière incidente.

Les expressions de ces matrices, référencées [8] par rapport à la verticale, sont données par les équations ci-dessous :

$$[P] = \frac{1}{2} \begin{bmatrix} 1 & -1 & 0 & 0 \\ -1 & 1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \end{bmatrix} \quad [L] = \begin{bmatrix} 1 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & C^2 & CS & -S \\ 0 & CS & S^2 & C \\ 0 & S & -C & 0 \end{bmatrix}$$

Polariseur lame quart onde

La quantité mesurable est l'intensité lumineuse de l'onde arrivant sur le détecteur. Cette intensité entièrement contenue dans le terme \vec{S}'_0 (du vecteur de Stokes de sortie \vec{S}'). En développant le vecteur de Stokes \vec{S}' , on peut tirer le premier terme \vec{S}'_0 , donné par :

$$S'_0(\theta, \theta') = I(\theta, \theta') = m_1(1 - c^2 c'^2) + m_2(c^2 - c'^2) + m_3(2s s' - 2cs c' s') + m_4(2cs s' + 2s c' s')$$

Avec : $C = \cos(2\theta), C' = \cos(2\theta'), S = \sin(2\theta), S' = \sin(2\theta')$

En choisissant quatre combinaisons (θ, θ') pour obtenir les m_{ij} .

On a besoin 4 équations pour obtenir les coefficients de matrice de Mueller.

Nous avons utilisé un système de 4 équations qui correspondent à 4 combinaisons des angles (θ, θ') . Les quatre intensités mesurées, par conséquent, a été exprimées par la matrice suivante :

$$[I] = [A][m_{ij}] \tag{6}$$

Où $[I] = [I_0 \dots \dots \dots I_3]^T$ (7)

Où la matrice [A] contient des termes qui ne dépendent que des angles (θ, θ') . On obtient les termes m_{ij} par :

$$[m_{ij}] = [A]^{-1}[I] \tag{8}$$

En choisissant quatre combinaisons (θ, θ') de sorte que la matrice $[A]$ ne soit pas singulière (donc inversible), les m_{ij} s'obtiennent immédiatement.

4. Mesures et resultats :

A l'aide d'un programme réalisé sous MATLAB, et visualisé sur LABVIEW 8.6 on peut traiter les données. Ce programme est utilisé pour obtenir les matrices $[A]^{-1}$, $[I]$, la résultante $[m_{ij}]$. En utilisant en suite ces matrices de Mueller pour calculer les valeurs de ψ et Δ . Tous ces paramètres sont calculés en fonction de l'angle d'incidence θ_i :

4.1 Mesure des paramètres ellipsométriques ψ et Δ .

Dans cette partie, en exploitant la matrice de Mueller calculée précédemment pour déterminer les paramètres ellipsométriques ψ et Δ .

Cette technique présente l'avantage de déterminer les paramètres ψ et Δ directement à partir de la matrice de Mueller, contrairement aux autres méthodes ellipsométriques conventionnelle qui mesurent ces paramètres de façon indirecte (en utilisant les coefficients de Fourier).

L'évolutions de ψ et Δ en fonction de l'angle d'incident. θ_i , sont représentés dans la figure suivante :

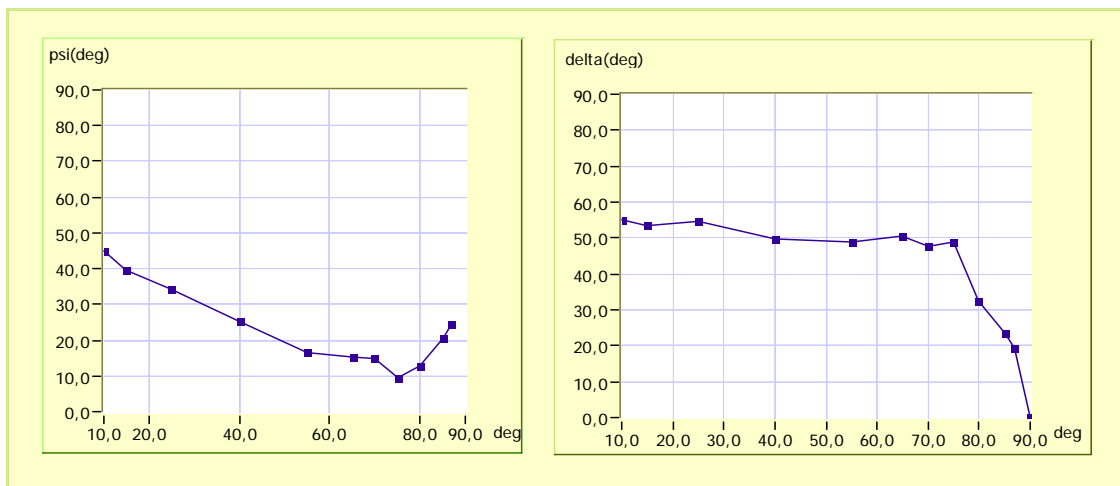


Figure.3.a

Figure.3.b

Figure.3 : courbes de paramètres optiques ψ , Δ en fonction de l'angle d'incidence θ_i
a. Le paramètre ψ , b. Le paramètre Δ .

Les courbes de la figure 3 représentent l'évolution des paramètres ψ et Δ pour différentes valeurs d'angles d'incidences θ_i .

Le paramètre ψ qui représente le rapport r_p/r_s sa variation en fonction de l'angle d'incidence représente une diminution au fur et à mesure que l'angle d'incidence augmente jusqu'à une valeur minimale et non nulle qui correspond un angle de 75° ensuite il croit à nouveau.

L'angle de 75° est appelé pseudo angle de Brewster, cette appellation pseudo Brewster est valable uniquement pour les matériaux possèdent certaine absorption pour lequel R_p est minimum et non nul.

- on ce qui concerne la courbe de Δ représenté par la courbe figure III.3.b on voit que quelque soit l'augmentation de l'angle d'incidence le Δ reste quasiment inchangé jusqu'à un angle de 75° qui correspond l'angle pseudo Brewster au- delà on observe une diminution brusque de la courbe.

4.2 Application de l'ellipsomètre de Mueller pour la détermination Les constantes optiques n et k .

Dans cette application, le but était d'exploiter la matrice de Mueller calculée pour déterminer l'indice de réfraction n et le coefficient d'extinction k .

Dans cette expérience nous avons développé un modèle mathématique basé sur les lois de Snell-Descartes, ainsi que les [6] coefficients de Fresnel généralisées pour la réflexion, afin de déterminer Les constantes optiques n et k .

Dans le cas général la relation entre la constante diélectrique ε et l'indice de réfraction est donné par ;

$$\varepsilon = n_0^2 (1 - k_0^2) = n^2 (1 - \frac{k^2}{\cos^2 j}) \tag{9}$$

$$n^2 k = n_0^2 k_0 \tag{10}$$

Où

ε : la constante diélectrique.

k : est le coefficient d'extinction.

j : est l'angle de réfraction.

n_0, k_0 sont l'indice de réfraction et le coefficient d'extinction pour une incidence normale

Si nous écrivons l'indice de réfraction du métal sous la forme complexe n' , les

équations(9) et (10) peuvent être combinées dans l'expression qui suit:

$$n'^2 = n^2 (1 - 2ik - \frac{k^2}{\cos^2 j}) = n_0^2 (1 - i k_0)^2 \tag{11}$$

Nous pouvons écrire les formules de Fresnel généralisées pour la réflexion de la lumière d'un métal sous la forme :

$$r_p e^{i\delta_p} = \frac{\tan(\varphi - j)}{\tan(\varphi + j)}, \tag{12}$$

$$r_s e^{i\delta_s} = \frac{\sin(\varphi - j)}{\sin(\varphi + j)}, \tag{12'}$$

Où r_p et r_s sont les amplitudes,

δ_p et δ_s les phases des deux composantes de la lumière réfléchie.

Les équations de Fresnel généralisées (12) et (12') sont le point de départ pour le calcul des constantes optiques des métaux, l'indice de réfraction et l'indice d'absorption. C'est-à-

dire, ils peuvent être exprimés comme fonction de l'angle d'incidence φ et les quantités accessibles aux mesures optiques.

Nous obtenons par division des expressions (12) et (12'), l'équation ci-dessous :

$$\frac{r_p}{r_s} e^{i(\delta_p - \delta_s)} = r e^{i\Delta} = \tan\varphi e^{i\Delta} = -\frac{\cos(\varphi + \Delta)}{\cos(\varphi - \Delta)} \quad (13)$$

Par transformation on obtient :

$$\frac{1 - \tan\varphi e^{i\Delta}}{1 + \tan\varphi e^{i\Delta}} = \frac{1}{\tan(\varphi + \Delta)} = \frac{\sqrt{n^2 - \sin^2\varphi}}{\sin\varphi \tan\varphi} \quad (14)$$

L'expression (14) peut s'écrire aussi sous la forme :

$$\frac{1 - \tan\varphi e^{i\Delta}}{1 + \tan\varphi e^{i\Delta}} = \frac{\cos 2\varphi - i \sin 2\varphi \sin \Delta}{1 + \sin 2\varphi \cos \Delta} \quad (14')$$

Nous obtenons une formule par laquelle, les constantes optiques des métaux sont déterminées et qui s'énonce comme suit :

$$\frac{\cos 2\varphi - i \sin 2\varphi \sin \Delta}{1 + \sin 2\varphi \cos \Delta} = \frac{\sqrt{n^2 - \sin^2\varphi}}{\sin\varphi \tan\varphi} \quad (14'')$$

L'équation (III.14'') au carré nous donne l'expression suivante :

$$\left(\frac{\cos 2\varphi - i \sin 2\varphi \sin \Delta}{1 + \sin 2\varphi \cos \Delta} \right)^2 = \left(\frac{\sqrt{n^2 - \sin^2\varphi}}{\sin\varphi \tan\varphi} \right)^2 \quad (15)$$

Après comparaison des parties réelle et imaginaire entre les deux côtés de l'équation (15) nous obtenons

$$\frac{\cos 2\varphi^2 - \sin 2\varphi^2 \sin^2 \Delta}{(1 + \sin 2\varphi \cos \Delta)^2} = \frac{n^2 \left(1 - \frac{\sin^2 \varphi}{\cos^2 \varphi}\right) - \sin^2 \varphi}{\sin^2 \varphi \tan^2 \varphi} \quad (17)$$

$$\frac{2 \cos 2\varphi \cos 2\varphi \sin \Delta}{(1 + \sin 2\varphi \cos \Delta)^2} = \frac{2n^2 k}{\sin^2 \varphi \tan^2 \varphi} \quad (17')$$

Nous avons maintenant deux équations pour deux inconnus, n et k qui sont donnés par :

$$n^2 = \left[1 + \frac{\tan^2 \varphi \cos 2\varphi^2}{(1 + \sin 2\varphi \cos \Delta)^2} \right] \quad (18)$$

$$k = \frac{\tan^2 \varphi \sin 2\varphi \cos 2\varphi \sin \Delta}{(1 + \sin 2\varphi \cos \Delta)^2 + \tan^2 \varphi \cos 2\varphi^2} \quad (19)$$

Afin de pouvoir évaluer les performances de l'ellipsomètre de Mueller d'un côté et de comparer de manière quantitative nos résultats, déterminer avec ce modèle mathématique et les résultats trouvés dans les autres articles, qui ont utilisé un angle d'incidence de 70° d'un autre côté, nous avons calculé les constantes optiques n et k pour un angle d'incidence de 70° qui correspondent un angle $\psi = 13.13^\circ$ et un déphasage $\Delta = 54.38^\circ$. L'application des équations III.19 et III.20 nous donne un indice de réfraction $n = 2,07$, et un coefficient d'extinction $k = 0,3$.

L'utilisation effective de ce modèle mathématique pour calculer les constantes optiques n et k s'avère en parfaite cohérence avec le qui a été trouvé dans les autres travaux énumérés bibliographiquement qui nous assure la fiabilité et de la sensibilité de cette méthode montre qu'il y a une certaine concordance entre ce qui a été trouvé et nos résultats.

Conclusion générale

Avec cette expérience préliminaire, nous avons voulu tester la possibilité de d'utiliser une nouvelle technique ellipsométrique pour la caractérisation propriétés optiques des films de TiO_2 , n et k .

A partir des résultats obtenus, on peut conclure ;
pourraient s'expliquer par un résiduel d'erreurs systématiques, ou des imperfections des composants optiques.

- La variation de ψ et Δ en fonction de l'angle d'incidence montre que il existe un angle égale 75° appelé pseudo Brewster correspond un coefficient de Fresnel parallèle RP minimal, non nul.

- L'utilisation du modèle mathématique pour calculé les constantes optiques n et k montre qu'il y a une concordance entre ce qui a été trouvé et nos résultats. Cette concordance confirme la précision et la fiabilité de cette méthode.

Il est donc pour obtenir une valeur juste des paramètres optiques du milieu étudié, il faut que dans tous les mesures expérimentales apercevaient une grande exactitude et il faut aussi vérifier les erreurs systématiques dans nos résultats expérimentaux.

Références.

- [1] R.M.A Azzam and 'Ellipsometry and polarized light' Northe Holland, 1986.
- [2] F.Bernoux ,J.H.Lecat 'Ellipsometrie R 6490 Technique de l'ingenieur traité mesures et contrôle
- [3] S. Lu and R. A. Chipman, "Interpretation of Mueller matrices based on polar decomposition," *J. of Opt. SOC. Am. A.* 13, pp. 1-8, 1996
- [4] R. A. CHIPMAN, "Depolarization index and the average degree of polarization", *Applied Optics*, vol. 44, n° 13, 2490-2495 (2005).
- [5] J.S. Baba. Cameron and G.L. Coté, 'Development and calibration of an automated Mueller matrix polarization imaging system'. *J.Biomed. Opt.* 7(3), 341-349, 2002
- [6] B. LAUDE-BOULESTEIX 'Développement instrumentaux en imagerie tomographique et polarimétrique' these de doctorat, Ecole polytechnique, Paris (2004)
- [7] Chipman, R. A., "Polarimetry", Ch. 22 in Vol. 2, *Handbook of Optics*, 2nd ed., M. Bass, ed., McGraw-Hill, New York, 1994.
- [8] D.Goldstein 'Polarized light' Second Edition, *Eglin Air Force Base, Florida, u.S.A.* 2003.