Sistema Automatizado para Medição do Indice de Refração de Substratos e Filmes Dielétricos

Cristiano M. B. Cordeiro, Donga Rodriguez de Souza e Lucila Cescato

Laboratório de Óptica, DFMC, IFGW, Unicamp, Cx.P. 6165

13083-970 Campinas, SP

 $e\text{-}mail:\ cmbc@ifi.unicamp.br$

Recebido em 4 de setembro, 2000. Aceito em 29 de janeiro de 2001.

Foi desenvolvido um sistema automatizado, baseado na medição do ângulo de Brewster, que permite medir o índice de refração de substratos e filmes dielétricos em diferentes comprimentos de onda, e com incerteza na terceira casa. O sistema consiste de um goniômetro $\theta X 2\theta$ acoplado a um motor de passo, um fotodetector conectado a um amplificador lock-in e um laser de baixa potência. A principal vantagem deste método em relação a outros métodos com incertezas similares, como o elipsômetro e o refratômetro é sua extrema simplicidade tanto instrumental como na obtenção dos resultados. Além disso o método não se restringe a substratos transparentes nem a determinadas faixas de valores para o índice de refração.

We developed a refractive index measurement system, based on the Brewster angle, that allows refractive index measurements of substrates and dielectric films with precision of 0.002 and 0.005 respectively. The system is composed of a $\theta X 2\theta$ goniometer, a step motor, a photo-detector, a lock-in amplifier and a low power laser which determines the measured wavelength. In comparison with other refractive index measurement systems, that reach similar precision, this is the simplest one because no calculation is involved. The method is also not limited to transparent substrates neither to certain refractive index ranges and for film measurements it is independent of the refractive index of the substrate.

I Introdução

As constantes ópticas são parâmetros fundamentais tanto para a caracterização de materiais como para o desenvolvimento de aplicações. Através da medição do índice de refração e do coeficiente de absorção de filmes e substratos, nas diversas regiões do espectro eletromagnético, é possível estudar mudanças estruturais, ligações químicas e a composição dos materiais. Por outro lado, o conhecimento do valor destas constantes é fundamental para o desenvolvimento de qualquer tipo de aplicação óptica de materiais.

A medição do índice de refração de materiais sólidos transparentes é usualmente realizada em refratômetros do tipo Abbe ou Pulfrich cujo funcionamento é baseado na medição do ângulo de reflexão total [1]. Nestes aparelhos a luz incidente a partir do substrato, forma no interior do prisma um contorno bem definido de claro e escuro permitindo a medição do ângulo crítico entre o material e o prisma do aparelho e, consequentemente, a medição do índice de refração do material [2]. Entretanto, esta medição, só pode ser realizada em materiais transparentes e com índices de refração menores que o do prisma do aparelho e do líquido de acoplamento [2].

Para materiais não transparentes, assim como para filmes, a medição do índice de refração pode ser feita por elipsometria [3,4]. Neste caso é possível medir tanto a parte real como a parte e imaginária do índice de refração, assim como, em alguns tipos de equipamentos, é possível se determinar também a espessura de filmes finos. Os elipsômetros mais completos, entretanto, são aparelhos muito caros e os resultados obtidos são altamente dependentes dos ajustes iniciais e da calibração do aparelho.

Para o caso de filmes finos a medição da refletância, ou transmitância, em função do comprimento de onda apresenta picos de interferência que permitem também a determinação das constantes ópticas dos filmes[3,5,6]. Este método, chamado de espectrofotométrico, é largamente utilizado na caracterização óptica de filmes finos, embora sua incerteza seja grande para a determinação do índice de refração e da espessura dos filmes [3].

Os métodos de medição do ângulo de Brewster para substratos e sua adaptação para medição de filmes (método de Abelès), são métodos extremamente simples para a determinação do índice de refração de substratos e filmes[3,5]. O método do ângulo de Brewster consiste em medir o ângulo de incidência para o qual a reflexão da luz polarizada na direção TM (campo elétrico contido no plano de incidência) se anula ou passa por um mínimo, enquanto que o método de Abelès consiste em medir o ângulo de incidência para o qual a refletância do filme se iguala à refletância do substrato para esta mesma polarização TM da luz incidente[3]. A tangente destes respectivos ângulos fornece diretamente a medida direta do índice do refração do substrato ou filme imerso no ar.

A exatidão e incerteza do método dependem basicamente da determinação do ângulo de Brewster. Nos sistemas mais simples isto é feito visualmente medindose o ângulo em que a luz refletida passa por um mnimo ou, no caso de filmes, comparando-se visualmente as intensidades refletidas no filme e no substrato[3,5,7].

Diversas propostas têm surgido para melhorar a definição destes ângulos[5,8,9]. Entretanto, muitas delas, apesar de complicarem o instrumental e o procedimento de medida, nada contribuem para diminuir a incerteza[10]. Neste trabalho demonstra-se que a automação das medidas de refletância em função do ângulo de incidência, assim como um simples ajuste dos dados obtidos próximo à região de mínimo ou de cruzamento das curvas nos permitem medir o índice de refração com incerteza experimental na terceira casa, comparável à obtida em elipsômetros e refratômetros comerciais. Além disso este procedimento facilita e melhora a repetibilidade das medidas, tornando os resultados independentes do operador.

II Descrição do Sistema

A finalidade do sistema é medir a intensidade da luz refletida em função do ângulo de incidência, estando o feixe incidente linearmente polarizado na direção TM (em relação ao plano de incidência). Através da medição do ângulo de mínima intensidade refletida, ou do ângulo de interseção entre as curvas da intensidade de luz refletida na amostra com filme e no substrato puro, obtém-se, respectivamente o ângulo de "Brewster" do substrato ou do filme [3].

Para variar o ângulo de incidência mantendo o detector na direção da luz refletida foi construído um sistema $\theta X 2\theta$. Este sistema foi fixado em um goniômetro da firma Microcontrole, acoplado a uma motor de passo, que controla a rotação da amostra (ângulo de incidência) com precisão de 0,01° por passo. A amostra é presa no centro do goniômetro enquanto o detector é fixado no braço. Ao girar a amostra de θ o braço gira 2θ mantendo o detector na direção da luz refletida. Figura 1 mostra uma fotografia do sistema $\theta X 2\theta$.



Figura 1. Foto do sistema $\theta X 2 \theta$.

Para a calibração inicial o feixe laser é ajustado para incidir sobre o centro do goniômetro, estando sua direção paralela ao plano de rotação do goniômetro. Este ajuste, assim como o do ângulo de incidência normal ($\theta = 0$) são fundamentais para a exatidão da medida. No nosso sistema o ajuste do ângulo de incidência normal é realizado com o auxílio da reflexão da luz na própria amostra, e de um anteparo com um furo circular ($\cong 1 \text{ mm}$ de diâmetro) para passagem da luz. Este anteparo está situado a 1.100 mm antes da amostra, de forma que um erro de 0.01° (um passo) no ângulo de incidência normal produz um deslocamento lateral no feixe refletido de 0,4 mm sobre o furo (1 mm de diâmetro). Tal deslocamento é perfeitamente detectável mesmo considerando o alargamento do feixe refletido pela difração no furo. Por outro lado um erro de 0,01° no ajuste do ângulo de incidência normal produz um mesmo erro de 0,01° no ângulo de Brewster, que corresponde a um erro no índice de refração para vidros da ordem de 0,0006.

Para realizar a medição em diferentes comprimentos de onda o sistema todo é mantido alinhado, substituindo-se apenas o laser. O novo ajuste do feixe laser é feito utilizando-se uma marcação da posição do feixe original.

Para a realização das medições foram utilizados três tipos de lasers de baixa potência: He-Ne ($\lambda = 633$ nm), GaAs ($\lambda = 832$ nm) e Nd:YAG com dobrador de frequência ($\lambda = 532$ nm) fortemente atenuado, e um polarizador de Glan-Thompson para garantir a polarização linear melhor que 1:1000. O polarizador é fixado num goniômetro vertical e seu ajuste fino na direção de polarização T.M. é feito buscando-se a mínima intensidade refletida numa amostra dielétrica e a incidência no ângulo de Brewster.

A medida da intensidade da luz refletida é feita para cada ângulo de incidência girando-se a amostra, via motor de passo sempre num mesmo sentido para evitar problemas de folga das engrenagens. A medida da intensidade é feita através de um detector ligado a um amplificador lock-in cuja referência é dada por um "chopper" colocado na trajetória do feixe laser. Uma mesma interface GPIB conecta o amplificador lock-in e a fonte do motor de passo a um microcomputador. A Figura 2 mostra um esquema do sistema completo.



Figura 2. Esquema da montagem completa para medida do índice de refração pelo ângulo de Brewster.

Para o controle dos motores e a aquisição dos dados foi utilizado um programa escrito em linguagem Pascal[11]. O mesmo programa armazena os dados e fornece simultaneamente um gráfico da intensidade refletida em função do ângulo de incidência na tela do computador. Através do ajuste dos parâmetros iniciais do programa pode-se escolher os ângulos inicial e final da medida assim como o intervalo angular entre cada aquisição. Desta foram pode-se realizar medidas mais rápidas ou mais precisas.

Para agilizar a medição, as medidas são feitas geralmente em intervalos de 0.5° quando se pretende levantar a curva de refletância de 0 a 90° e em intervalos de $0,05^{\circ}$ quando feitas apenas ao redor do ângulo de Brewster. Para a medição de filmes as medidas são feitas em següência para o substrato e para o substrato com filme, sempre verificando-se o ajuste do ângulo de incidência normal. A Figura 3 mostra um exemplo destas medidas para um filme de TiO_x sobre substrato de vidro. Como as medidas são feitas a cada 0.05° ou $0,5^{\circ}$, para se determinar o ângulo de Brewster do substrato mais rapidamente e com menor incerteza que a separação das medidas é feito um simples ajuste polinomial das medidas experimentais do substrato, próximo à região de mínimo, enquanto que para a determinação do ângulo de Brewster do filme é feito um ajuste polinomial das medidas na região próxima ao cruzamento.



III Medição de Substratos

Com o objetivo de estudar a exatidão e incerteza do método assim como a repetibilidade do sistema de medidas foram realizadas diversas medições do ângulo de Brewster de um mesmo substrato de vidro para $\lambda = 633$ nm. A Figura 4 mostra a variação dos valores dos índices de refração obtidos para diferentes medidas. A partir destes resultados obtivemos para esta amostra o índice de refração: $n = 1,509 \pm 0,002$.



Figura 3. Exemplo de medidas da intensidade refletida em

função do ângulo de incidência obtidas para substrato de vidro e para filme de óxido de titânio depositado sobre o

mesmo substrato de vidro.



Figura 4. Valores do índice de refração obtidos para um mesmo substrato de vidro, utilizando um laser de He-Ne, emrunção do nmero da medida realizada.

O resultado desta medida foi comparado com a medida do índice de refração desta mesma amostra em um Refratmetro de Abbe comercial (Karl Zeiss/Jena), para o mesmo comprimento de onda, considerando-se um fator de correção entre o comprimento de onda nominal do aparelho (λ =589 nm) e o utilizado (λ = 633nm). O valor médio do índice de refração obtido no refratômetro de Abbe foi de: $n = 1,506 \pm 0,002$.

Para ilustrar a exatidão e a incerteza do método em relação à dispersão dos materiais medidos, a Figura 5 mostra o resultado da medição de um substrato de BK 7 e sua correspondente barra de erro $(n = 1, 514\pm0, 002)$, juntamente com os valores dos índices de refração tabelados [12] para este vidro em diversos comprimentos de onda. Os valores tabelados foram ajustados na relação de Cauchy[13]:

$$n = A + \frac{B}{\lambda^2} \tag{1}$$



Figura 5. Curva do índice de refração em função do comprimento de onda para o vidro BK7, obtida pelo ajuste dos pontos tabelados na relação de Cauchy, juntamente com o ponto medido (em λ =632,8nm) pelo ângulo de Brewster.

O valor tabelado para o BK7 no comprimento de onda medido (λ =633nm) é de 1,51509, portanto pode-

mos concluir que o valor medido esta exato dentro da incerteza da medição. Além disso, se a mesma incerteza do método se mantiver para outros comprimentos de onda, pode-se concluir que o método permite realizar medições da dispersão de vidros.

Pelas medições do índice de refração realizadas em substratos podemos estimar um desvio médio de 0,002. A boa concordância dos valores obtidos tanto na medição de substratos de vidro comum feitas com o refratômetro de Abbe, como pela medição de um vidro óptico BK-7, comprovam a exatidão do método para realização de medidas de índice de refração de substratos dentro da incerteza de 0,002.

IV Medição de Filmes Finos

Numa primeira etapa, três tipos de filmes finos foram medidos utilizando o sistema e o método descrito na seção II:

1) Carbono amorfo hidrogenado (a-C:H), depositados por PECVD (Plasma Enhanced Chemical Vapor Deposition)[14] em substratos de vidro.

2) Oxido de Titanio (TiO_X) depositados também por PECVD em substratos de vidro.

3) Filmes de fotorresina Shipley (AZ 1518) depositados por centrifugação em vidro e silício.

A tabela abaixo mostra um resumo dos índices de refração obtidos para estes filmes no comprimento de onda do laser de He-Ne (λ =633 nm). Como o estudo da incerteza da medição de filmes está desenvolvido nas seções seguintes os valores apresentados mostram apenas algarismos significativos.

Tabela I. Í ndices de refração obtidos para 3 filmes diferentes sobre substratos de vidro, no comprimento de onda λ =632,8nm.

Filmes	Índices
a-C:H	1.90
${ m TiO}_x$	1.78
Fotorresina Virgem (AZ 1518)	1.63

Devido à facilidade de deposição e ao interesse particular na caracterização óptica destes materiais, foram utilizados exclusivamente filmes de fotorresina Shipley AZ 1518 para o estudo da incerteza e da exatidão na medição do índice de refração de filmes. Como o índice de refração das fotorresinas varia com a exposição à luz ultravioleta, estes materiais foram preparados e medidos em duas condições diferentes: virgens (sem nenhuma exposição) e completamente saturados à exposição ultravioleta.

IV.1. Influência do Substrato

Para comprovar que as medições do índice de retração dos filmes não dependem do tipo de substrato[3] foram depositados filmes idênticos de fotorresina AZ 1518 (virgens) em dois tipos de substratos: vidro e silício. Um exemplo de medições da intensidade refletida dos filmes com as respectivas curvas da intensidade refletida nos substratos está mostrada na Figura 6 para λ =633 nm. Como pode ser observado, embora as curvas sejam bastante diferentes, ambos os pontos de cruzamento ocorrem em $\theta_B = 58, 54^\circ$, demonstrando que a medição do índice de refração do filme realmente não é influenciada pelo tipo de substrato. O mesmo resultado se repetiu para diversas outras medidas dentro da incerteza de 0,02°.



Figura 6. Medidas da intensidade refletida do laser de He-Ne (=632,8nm) em função do ângulo de incidência para filmes de fotorresina AZ 1518 depositados sobre substratos de silício e de vidro com as respectivas curvas dos substratos.

IV.2. Medições de Filmes de Fotorresina AZl518 em Diferentes Comprimentos de Onda

Foram realizadas medições de dois conjuntos de amostras de fotorresina AZ 1518 (virgens e saturadas) depositadas sobre substratos de vidro em 3 comprimentos de onda (λ =832nm, λ =633nm e λ =532nm). As Figuras 7, 8 e 9 mostram exemplos das curvas de intensidade refletida em função do ângulo de incidência para os três comprimentos de onda utilizados, com os respectivos índices de refração obtidos para as amostras virgens e saturadas. Pela média dos índices de refração obtidos em diferentes medidas para estes três comprimentos de onda obtivemos um desvio médio para as medções do índice de refração de filmes de 0,005.



Figura 7. Curvas da intensidade refletida em função do ângulo de incidência medidas com um laser de GaAs(λ =832nm), para substrato de vidro e duas amostras de fotorresina AZ 1518 (amostra virgem e amostra saturada). Cada conjunto de medidas filme-substrato foi realizado com um fotodetector de sensibilidade diferente.



Figura 8. Curvas da intensidade refletida em função do ângulo de incidência, medida com o laser de He-Ne(λ =632,8nm), para uma amostra de fotorresina AZ 1518 virgem, uma saturada e para o substrato.



Figura 9. Curvas da intensidade refletida em função do ângulo de incidência, medidas com um laser de Nd. $YAG(\lambda=532nm)$ para uma amostra de fotorresina AZ 1518 virgem, uma saturada e para o substrato.

Como a absorção dos filmes de fotorresina aumenta do vermelho (λ =633nm) para o verde (λ =532nm), foram utilizados filmes muito mais finos para a medida no verde. Desta forma podemos reduzir o efeito da absorção dos filmes nas medidas, que é uma das maiores limitações do método de Abelès[5].

Quando ocorre absorção, o ponto de cruzamento entre as curvas do substrato com filme e do substrato puro deve depender da espessura do filme. Em geral quanto maior a absorção, maior o erro. Um método prático para verificar se a absorção está influenciando as medidas do índice de refração é realizar medidas em filmes com espessuras diferentes. Se, ao reduzirmos a espessura do filme, o ponto de cruzamento se mantiver, pode-se considerar que a absorção não está influenciando as medidas. Caso contrario é necessário reduzir ainda mais a espessura do filme até que isto aconteça, desde que a espessura seja suficiente para garantir a homogeneidade do filme[15]. Em média filmes da ordem de 100Å já podem ser medidos pelo método de Abelès[3].

A Figura 10 mostra um resumo das medidas obtidas para os filmes de fotorresina Shipley AZ 1518 nos três comprimentos de onda medidos nas duas condições (virgem e saturada), com suas respectivas barras de erro. Na mesma figura são mostrados os valores fornecidos pelo fabricante[15] em três comprimentos de ondas diferentes, além do valor médio obtido para medidas destes filmes feitas num elipsômetro (Gaertner) no comprimento de onda λ =633nm. As curvas mostram o ajuste destes pontos à relação de Cauchy[13] (Equação 1), tendo sido obtidos os seguintes valores para as constantes: A=1.571 e B=1.584E4 para a curva pontilhada (correspondente à fotorresina saturada) e A=1.590 e B=1.592E4 para a curva contínua (correspondente ao índice da fotorresina virgem).



Figura 10. Curva com os valores dos índices de refração medidos (\Box, \circ) e valores tabelados (\blacksquare, \bullet) para filmes de fotorresina AZ 1518 (virgens e saturados), ajustados à relação de Cauchy. No mesmo gráfico são mostrados os resultados das medidas feitas com o elipsômetro (Δ) em λ =632,8nm para um filme virgem e um filme saturado.

Como pode ser observado, a concordancia dos valores medidos em λ =633nm, pelo método de Abelès: 1,632 ± 0,005 para fotorresina virgem e 1,615 ± 0,005

para a fotorresina saturada, com os valores obtidos no elipsômetro: $1,629 \pm 0,003$ e $1,619 \pm 0,003$, para a fotorresina virgem e saturada respectivamente, é excelente. A concordância dos valores medidos com os valores fornecidos pelo fabricante também é muito boa. A discrepância entre os pontos fornecidos pelo fabricante para a fotorresina virgem e a relação de Cauchy ocorre devido à presença de bandas de absorção da fotorresina virgem na região do ultra-violeta.

V Conclusão

Foi construído um sistema automatizado, baseado na medição do ângulo de Brewster e no método de Abelès, que permite a medição do índice de refração de filmes e substratos, em diferentes comprimentos de onda, com exatidão e incerteza comparáveis a de equipamentos comerciais que funcionam por princípios diferentes. A maior vantagem deste método em relação aos demais é sua simplicidade e sua aplicabilidade a diferentes tipos de substratos, filmes e comprimentos de onda.

Em relação ao método de Abelés clássico para a medição de filmes, no qual a medida é feita simultaneamente para o filme e para o substrato utilizando-se um único feixe expandido e colimado (que incide no degrau formado pelo filme sobre o substrato) este método apresenta a vantagem de ser independente do operador e utilizar apenas o feixe laser direto, o que permite a troca do seu comprimento de onda .

O principal problema do método de Abelès é o uso de espessuras inadequadas para os filmes. Nestas espessuras ocorre interferência destrutiva, que dificulta e, às vezes, até impossibilita a determinação do ângulo de cruzamento entre as curvas de refletância do filme e do substrato. A presença de absorção nos filmes também pode gerar enormes erros nos valores medidos.

A qualidade óptica das superficies utilizadas, assim como sua rugosidade, não são grandes fontes de erro para este método uma vez que apenas a superfície na área do feixe laser é utilizada. O efeito da rugosidade é gerar um cone de espalhamento na luz refletida pela amostra. Este efeito pode ser minimizado coletandose toda a luz espalhada no detector. Além disso, para filmes muito finos, a rugosidade do filme segue geralmente a rugosidade do substrato, produzindo assim distribuições angulares de espalhamento muito similares.

Na medição de substratos a incerteza obtida foi de 0,002. A exatidão da medida do índice de refração de substratos foi verificada pela comparação do índices de refração de vidros medidos com valores tabelados (BK7) e com valores medidos no num refratômetro comercial.

Para a medição de filmes estimamos uma incerteza de 0,005. A verificação da exatidao do método para medição de filmes foi feita através da comparação dos valores medidos para filmes de fotorresina AZ 1518, com os valores medidos para os mesmos filmes e mesmo comprimento de onda, em um elipsômetro comercial (Gaertner). A boa concordância dos valores obtidos assim como com os valores fornecidos pelo fabricante (em outros comprimentos de onda), demonstram a exatidão do método também para a medição de filmes.

Agradecimentos

Agradecemos ao estudante Elso Luiz Rigon pelo apoio em diversas etapas do trabalho, à técnica Aparecida do Carmo da Silva Almeida pela preparação de amostras e limpeza dos substratos, ao Sr. Angelo Gobbi e ao LNLS(CPqD) pelas medidas no elipsômetro. Agradecemos ao apoio financeiro da FAPESP (Fundação de Amparo à Pesquisa do Estado de São Paulo), SAE (Serviço de Apoio ao Estudante)/Unicamp e CNPq (Conselho Nacional de Pesquisa).

References

- M. Born and E. Wolf, "Principles of Optics", 7a. edição, Cambridge 1999 pag.53.
- [2] Manual do Refratômetro de Abbe, Zeiss Jena.
- [3] O. S. Heavens, "Optical Properties of Thin Solid Films", Dover, 3a edição (1965), Canada 1991.
- [4] R.M.A. Azzam and N.M. Bashara, "Ellipsometry and Polarized Light". Elsevier (1986), chapters 4,5 and 6.
- [5] F. Abelàs "Methods for determining optical parameters of thin films" in *Progress in Optics* vol. II, second edition, North Holland 1968.

- [6] P. Rouard and P Bousquet "Optical Constants of Thin Films" in *Progress in Optics* vol. IV, North Holland 1965.
- [7] M. Gibson and J. Frejlich, "Implementation of the Abelès Method of Thin Film refractive index measurements with transparent substrates", Appl. Optics, 23, 1904-1905 (1984).
- [8] M. Hacskalylo, "Determination of the Refractive Index of Thin Dielectric films", J. Optical Soc. Am. 54(2), 198-203 (1964).
- [9] A. R. Reisinger, "Alternative to Ellipsometry for Characterizing Transparent Planar Thin Films", Optical Engineering, Vol. 20, n.1, 111-114 (1981).
- [10] Q.H. Wu and I. Hodkinson, "Precision of Brewsterangle methods for optical thin films", J. Opt. Soc. Am. A 10(9) 2072-2075 (1993).
- [11] Bernardo de Assunção Mello Tese de Mestrado: "Caracterização de Redes de Difração Holográficas", outubro 1992 no IFGW.
- [12] Ohara Optical Glass, mini catalog, 35 (1977).
- [13] G. R. Fowles, Introduction to Modern Optics, Holt, Rnehart and Winston Inc. 1975 (USA), pag. 20.
- [14] J. C. Angus, P. Koidl and S. Domitz, "Plasma Deposited Thin Films", Boca Rayton, CRC Press, 1986).
- [15] Ikuo Awai and Jun-ichi Ikenoue, "Effect of film transmition layers on the Abèles method", Applied Optics, Vol.23, 11, 1890-1896 (1984).
- [16] www.azresist.com/graphics.