MÉTHODE DE DÉTERMINATION DES PROPRIÉTÉS OPTIQUES DE COUCHES MINCES ET APPLICATION A LA RÉALISATION DE COUCHES DE GERMANIUM A INDICES OPTIQUES INDÉPENDANTS DE L'ÉPAISSEUR ⁽¹⁾

Par JEAN-PIERRE GOUDONNET et MICHEL PAUTY,

Laboratoire de Photoélectricité, Faculté des Sciences de Dijon, équipe associée au C.N.R.S.

(Reçu le 25 juillet 1968.)

Résumé. — Nous décrivons une méthode de fabrication de couches minces de germanium dont les indices optiques n et k ne varient pas avec l'épaisseur. Les indices n et k sont déterminés à l'aide de mesures optiques effectuées dans le vide même qui a servi à préparer les lames. Si les couches minces sont obtenues par empilement régulier de couches d'épaisseurs égales et si les paramètres d'évaporation sont maintenus constants, les résultats de nos expériences nous permettent de considérer les couches fabriquées comme homogènes, limitées par deux faces planes et parallèles, caractérisées par des épaisseurs optiques d indépendantes de la longueur d'onde et par des indices optiques indépendants de l'épaisseur.

Abstract. — This paper describes a method of producing thin films of germanium whose optical constants n and k do not vary with the thickness. The constants n and k are determined with help of optical techniques in the same vacuum which is used in preparing the films. If the thin films are made by a regular piling up of layers of equal thickness and if the evaporation parameters are held constant, the results of our measurements enables us to consider the films produced as homogeneous, limited by two parallel planes, characterized by an optical thickness d which does not depend on wavelength, and by optical constants which are independent of the thickness.

Introduction. — Les calculs de E. Coquet [1] permettant de déterminer le libre parcours L des photoélectrons dans un métal supposent que la couche mince évaporée de ce métal est homogène, isotrope, à faces planes et parallèles et que les indices optiques sont constants dans le domaine de longueur d'onde utilisé.

Nous avons cherché, dans le but de la détermination du libre parcours des photoélectrons dans les couches minces de germanium, un mode de fabrication nous permettant l'obtention de structures à indices optiques constants pour toutes les épaisseurs : la méthode de détermination de ces indices constitue une méthode de vérification de l'homogénéité des couches et nous permet de supposer que ces couches sont limitées par des faces planes et parallèles.

I. Choix d'une méthode. — Les méthodes utilisées généralement nécessitent des mesures de coefficient de

réflexion, de transmission et de changement de phase en incidence normale [2 à 5]. Nous avons jugé préférable d'appliquer une méthode graphique utilisant des mesures de pouvoirs réflecteurs pour une lumière monochromatique polarisée, perpendiculairement ou parallèlement au plan d'incidence et pour divers angles d'incidence i . Cette méthode a l'avantage de donner un couple d'indices optiques représentant les propriétés optiques de la couche étudiée pour toutes les incidences. Trois mesures indépendantes suffisent pour déterminer n , k et d , les autres mesures nous permettent une vérification. Si l'accord est bon, le couple d'indices n et k ainsi déterminé caractérise bien la couche étudiée et la lame peut être considérée comme homogène, isotrope, à faces planes et parallèles. Un mauvais accord est le signe d'une couche défectueuse.

II. Dispositif expérimental. — 1. ENCEINTE (*fig. 1*). — L'appareil de vaporisation dans le vide utilise un groupe de pompe classique. L'enceinte est percée de neuf brides fermées par des hublots de quartz

⁽¹⁾ Ce travail a bénéficié de l'aide financière de la D.G.R.S.T.

FIG. 1. — Enceinte : A, Piège à azote liquide ; P, Plateau tournant ; C, Creuset ; S, Source ; M, Couche étudiée ; H, Hublots de quartz.

et nous permet la mesure des pouvoirs réflecteurs sous des angles d'incidence de 15°, 30°, 45°, 60°, 70° et 75°.

2. FABRICATION DES COUCHES. — Le germanium à évaporer est utilisé sous forme de grains. Lorsque la pression dans l'enceinte atteint 2×10^{-7} torr, nous le faisons fondre pour éliminer les impuretés et dégazer

le creuset, puis nous amenons le substrat de quartz en position horizontale et effectuons l'évaporation proprement dite. La mesure de l'épaisseur des couches est réalisée au moyen du système Lostis, microbalance à quartz piézoélectrique. En admettant que le métal évaporé se condense de la même manière sur le quartz piézoélectrique et sur le support de la photocathode, l'épaisseur de métal $(d)_m$ déposée sur le support se déduit de la variation ΔF de la fréquence du quartz par la relation :

$$\Delta F = K d_m.$$

La constante K est déterminée à partir de la mesure de la variation ΔF correspondant à l'évaporation d'une couche très épaisse. La pesée précise de la masse de métal déposée permet de connaître l'épaisseur de cette couche en supposant que la densité du métal à l'état massif est la même que celle du métal en couche mince. Cette méthode permet d'accéder rapidement à l'épaisseur massique de la lame. Cet étalonnage a été vérifié par des mesures interférométriques.

3. DISPOSITIF OPTIQUE (fig. 2). — Pour vérifier que les couches peuvent être assimilées à des lames homogènes, isotropes à faces planes et parallèles, il faut un dispositif permettant la mesure des pouvoirs réflecteurs avec une grande précision pour une gamme étendue d'angles d'incidence et pour deux polarisations de la lumière.

Pour obtenir une telle précision, il est nécessaire que le faisceau incident garde une structure simple indépendante de l'angle d'incidence et que la partie de couche étudiée soit toujours la même. Les axes des faisceaux incidents et réfléchis doivent rester perpendiculaires à l'axe de rotation de la lame, pour tous les angles d'incidence. Nous avons réalisé à cet effet un porte-échantillon dont les possibilités de réglage

FIG. 2. — S, Source ; L, Lentille en quartz ; F, Filtre monochromatique ; D, Diaphragme ; P, Glazebrook ; Q, lame semi-transparente ; M, Couche étudiée ; E, Écran diffusant ; PM₁, PM₂, Photomultiplicateurs 51 UVP ; G₁, G₂, Enregistreur double Sefram.

nous permettent la réalisation des conditions précédentes.

Le substrat possède deux degrés de liberté : il peut être mis au-dessus des creusets pendant l'évaporation, puis tourner dans l'axe du dispositif au moyen de deux passages à vide et de deux engrenages. La rotation de l'échantillon en position mesure est démultipliée afin d'obtenir un réglage fin lors de la mesure des pouvoirs réflecteurs.

Pour tenir compte des fluctuations d'intensité du faisceau incident, nous avons utilisé la méthode à double faisceau. Les deux faisceaux sont recueillis par deux photomultiplicateurs 51 UVP de la Radiotechnique dont les sorties sont reliées à un enregistreur double Sefram. La comparaison des deux signaux permet la détermination du pouvoir réflecteur au millième près.

III. Détermination simultanée de l'indice et de l'épaisseur des couches minces de germanium.

1. PRINCIPE. — Dans la mesure où la lame peut être considérée comme homogène, isotrope et limitée par deux plans parallèles, les pouvoirs réflecteurs en amplitude pour les polarisations perpendiculaire ($\perp$) et parallèle ($\parallel$) au plan d'incidence, ont la forme suivante :

$$r = \frac{r_1 + r_2 \exp - 2j\delta}{1 + r_1 r_2 \exp - 2j\delta}$$

$$\delta = 2\pi/\lambda(n - jk) d \cos i_1$$

r_1, r_2 étant respectivement les coefficients de réflexion de Fresnel pour l'interface air-métal et métal-support, celui-ci étant supposé d'épaisseur infinie. Pour satisfaire cette condition, nous avons déposé sur la face arrière de la lame de quartz une couche de picéine.

Nous avons tracé, grâce aux résultats fournis par un calculateur électronique, des abaques nous donnant $R_{\parallel}$ en fonction de l'angle d'incidence i_0 pour différentes valeurs de d/λ , k prenant lui aussi des valeurs différentes. La mesure de $R_{\parallel}(i_0)$ comparée aux relations théoriques $R_{\parallel} = R_{\parallel}(i_0, n, k, d/\lambda)$ conduit pour chaque valeur de d/λ que nous nous sommes fixée à une relation entre n et k :

$$n = h_{i_0, d/\lambda}(k).$$

Si on trace les courbes $n = h_{i_0, d/\lambda}(k)$, pour les angles d'incidence i_0 et i'_0 , leur intersection permet de déterminer une relation entre n et k pour le couple i_0, i'_0 :

$$n = g_{i_0, i'_0}(k).$$

L'intersection de deux courbes g_{i_0, i'_0} et g_{i_0, i''_0} , par exemple, donne n et k . Les figures 3 et 4 donnent un exemple de détermination pour $\lambda = 3650 \text{ \AA}$.

Avec la méthode graphique exposée, pour interpolier avec une précision suffisante, il faut prendre pour n et k un pas de l'ordre de 0,1. Pour le rapport d/λ , le

FIG. 3. — Variations avec l'angle d'incidence de $R_{\perp}$ et $R_{\parallel}$ pour différentes épaisseurs.

Les croix représentent les points expérimentaux, les courbes en traits pleins sont les courbes calculées à partir des indices obtenus.

FIG. 4. — Résultats expérimentaux pour une couche d'épaisseur massique $\bar{d} = 50 \text{ \AA}$ ($\lambda = 3650 \text{ \AA}$) :

$$R_{\parallel} 30^\circ = 0,280$$

$$R_{\parallel} 60^\circ = 0,112$$

$$R_{\parallel} 75^\circ = 0,007.$$

Les courbes sont tracées pour $i_0 = 30^\circ$, $i'_0 = 60^\circ$, $i''_0 = 75^\circ$:

$$d_1/\lambda = 0,012 ; \quad d_2/\lambda = 0,020.$$

On obtient pour la couche étudiée : $n = 3,6$ et $k = 3,2$, $d/\lambda = 0,015$, soit $d_{\text{opt}} = 55 \text{ \AA}$.

pas doit être d'autant plus serré que le rapport d/λ est faible. Nous avons pris pour d/λ un pas de 0,0002 si d/λ est compris entre 0,001 et 0,002, pour arriver finalement à un pas de 0,20 à partir de $d/\lambda = 1$.

Lorsque les pouvoirs réflecteurs $R_{\parallel}$ et $R_{\perp}$ ne dépen-

TABLEAU I

d MASSIQUE Å	9 Å	34 Å	50 Å	70 Å
—	—	—	—	—
λ	$k = 1,6$	$k = 1,5$	$k = 1,6$	$k = 1,6$
5 780 Å	$n = 4$	$n = 4,4$	$n = 4,7$	$n = 4,4$
	$d_{\text{opt}} = 5,78$ Å	$d_{\text{opt}} = 44$ Å	$d_{\text{opt}} = 63,5$ Å	$d_{\text{opt}} = 87$ Å
5 460 Å	$k = 2$	$k = 2,35$	$k = 2,1$	$k = 2,2$
	$n = 4,4$	$n = 4,8$	$n = 4,7$	$n = 4,8$
	$d_{\text{opt}} = 6$ Å	$d_{\text{opt}} = 41$ Å	$d_{\text{opt}} = 60$ Å	$d_{\text{opt}} = 93$ Å
3 650 Å	$k = 2,8$	$k = 3,2$	$k = 3,2$	$k = 3,3$
	$n = 3,2$	$n = 3,6$	$n = 3,6$	$n = 3,6$
	$d_{\text{opt}} = 7,6$ Å	$d_{\text{opt}} = 40$ Å	$d_{\text{opt}} = 55$ Å	$d_{\text{opt}} = 81$ Å
d_0 moyen	6,46 Å	41,7 Å	59,5 Å	87 Å
Δd_0 moyen	0,75 Å	1,6 Å	3 Å	4 Å
$\Delta d_0/d_0$	11,5 %	3,9 %	5 %	4,6 %
d MASSIQUE Å	87 Å	147 Å	325 Å	560 Å
—	—	—	—	—
λ	$k = 1,65$	$k = 1,6$	$k = 1,6$	$k = 1,6$
5 780 Å	$n = 4,3$	$n = 4,4$	$n = 4,4$	$n = 4,5$
	$d_{\text{opt}} = 105$ Å	$d_{\text{opt}} = 173$ Å	$d_{\text{opt}} = 360$ Å	$d_{\text{opt}} = 578$ Å
5 460 Å	$k = 2,1$	$k = 2$	$k = 2$	$k = 2,1$
	$n = 4,9$	$n = 4,8$	$n = 4,8$	$n = 4,4$
	$d_{\text{opt}} = 110$ Å	$d_{\text{opt}} = 164$ Å	$d_{\text{opt}} = 380$ Å	$d_{\text{opt}} = 546$ Å
3 650 Å	$k = 3,1$	$k = 3,2$	$k = 3,2$	$k = 3,3$
	$n = 3,7$	$n = 3,5$	$n = 3,6$	$n = 3,7$
	$d_{\text{opt}} = 92$ Å	$d_{\text{opt}} = 146$ Å	$d_{\text{opt}} = 310$ Å	$d_{\text{opt}} = 510$ Å
d_0 moyen	102 Å	161 Å	350 Å	545 Å
Δd_0 moyen	7 Å	10 Å	26 Å	23 Å
$\Delta d_0/d_0$	6,8 %	6,2 %	7,5 %	4,2 %

dent plus sensiblement du rapport d/λ , c'est-à-dire pour des épaisseurs suffisamment grandes, notre méthode ne nous permet plus de déterminer l'épaisseur optique d . La limite supérieure de l'épaisseur d mesurable est fonction des valeurs de n , k et λ . Nous pensons pouvoir lever cette indétermination à l'aide de mesures de coefficients de transmission, tant que ceux-ci restent mesurables avec une précision suffisante.

2. **RÉSULTATS.** — Nous avons donné, dans une publication précédente, des résultats concernant les couches minces de Ge et les variations importantes d'indices correspondantes [6]. Nous nous sommes depuis lors attachés à réaliser des couches à indices optiques indépendants de l'épaisseur. Pour obtenir ce résultat, nous avons utilisé une méthode déjà citée

par Pauty et Coquet [1 et 7] qui consiste à déposer sur le substrat des couches successives d'épaisseur constante, les paramètres d'évaporation restant les mêmes. Nous avons obtenu les résultats suivants (tableau I).

IV. **Conclusion.** — Les couches fabriquées gardent des indices constants au-dessus d'une épaisseur mas-sique supérieure à 50 Å, grâce à un mode de fabrication approprié. La détermination de l'épaisseur optique des lames est d'autant plus facile que celles-ci ne sont pas trop épaisses. La précision est la meilleure pour des couches comprises entre quelques centaines et quelques dizaines d'angströms. Elle devient faible pour les couches très minces, donc très lacunaires. Pour les couches les plus épaisses, les pouvoirs réflec-

teurs sont alors sensiblement indépendants de l'épaisseur et la précision devient de plus en plus faible.

Les coefficients optiques n et k et l'épaisseur optique d ainsi déterminés représentent bien les propriétés optiques de toutes les couches, pour tous les angles d'inci-

dence, pour les deux polarisations de la lumière. La répartition de l'énergie électromagnétique à l'intérieur des lames étudiées peut être assimilée à celle que l'on obtient avec des couches homogènes, à faces planes et parallèles.

BIBLIOGRAPHIE

- [1] COQUET (E.), Thèse, Dijon, 1967.
 - [2] MALE (D.), Thèse, Paris, 1954, *Ann. Physique*, 1954, **12**, 9, 10.
 - [3] SCHOPPER (M.), *Z. Physik*, 1951, **130**, 265.
 - [4] ABELES (F.), *Rev. Opt.*, 1953, **32**, 251-260.
 - [5] BOUCHARD (M. G.), Colloque International sur les Problèmes fondamentaux dans la Physique des Couches minces, Clausthal, 1965.
 - [6] PAUTY (M.) et GOUDONNET (J.-P.), *C. R. Acad. Sc. Paris*, 1967, **265**, 997.
 - [7] PAUTY (M.), Thèse, Dijon, 1966.
-