

XXXIV Всероссийская школа-семинар «Волновые явления: физика и применения» (Волны–2023)  
Секция «НАНОФОТОНИКА, МЕТАМАТЕРИАЛЫ И ФОТОННЫЕ КРИСТАЛЛЫ»

## Алгоритм определения оптического профиля тонких градиентных пленок методом поверхностного плазмонного резонанса

А. В. Анисимов,\* С. А. Лобастов,† И. Ш. Хасанов‡

Научно-технологический центр уникального приборостроения РАН,  
Лаборатория терагерцевой и инфракрасной оптики  
Россия 117342, Москва, ул. Бутлерова, 15

(Поступила в редакцию 23.08.2023; подписана в печать 11.09.2023)

Данная работа посвящена описанию физических и математических аспектов работы алгоритма определения оптического профиля тонких градиентных пленок методом поверхностного плазмонного резонанса (ППР). Алгоритм основан на минимизации функции расхождения, которая характеризует отклонение между экспериментальными данными и модельными данными искомого градиентного слоя, аппроксимированного кубическим эрмитовым интерполянтном, известного как РСНПР. Оптимальные координаты узлов сплайна, аппроксимирующего градиентный оптический слой, определяются с помощью оптимизации методом Пауэла, реализованного на языке Python. Для повышения стабильности, точности и скорости поиска алгоритм разбит на три этапа. Каждый этап разработан для сужения области поиска и выбора начальных параметров для следующего этапа, которые максимально приближены к искомому градиентному слою. Алгоритм использует данные сканирования методом ППР по углу, длине волны и внешней среде.

PACS: 52.70.Kz.

УДК: 539.216.2

Ключевые слова: нанооптика, поверхностный плазмонный резонанс, градиентный тонкий слой, кубический эрмитов интерполянт, метод Пауэла.

### ВВЕДЕНИЕ

Для производства тонких пленок и покрытий требуется точный метод неразрушающего контроля. Для этих целей часто применяются такие методы, как спектрофотометрия в сочетании с эллипсометрией. Однако, когда речь идет о пленках, толщина которых намного меньше длины волны света ( $d \ll \lambda$ ), коэффициенты отражения  $R$  и пропускания  $T$  практически не отличаются от подложки без покрытия [1]. Кроме того, стандартные фотометрические методы не способны предоставить достоверную информацию о распределении оптических констант, которые слабо отличаются по толщине тонкого слоя. Эта информация крайне важна при производстве градиентных тонких пленок, характеризующихся гладким и непрерывным изменением оптических констант по глубине. Градиентные тонкие пленки играют важную роль в современных технологиях, например, для улучшения устойчивости зеркал к лазерному воздействию [2]. Благодаря градиентному показателю преломления такие пленки позволяют достигать интересных физических эффектов, таких как невидимость, нелокальная дисперсия и резонансное туннелирование электромагнитных волн для эффективной передачи энергии [3]. Для объемного излучения оптический путь в градиентной тон-

кой пленке почти не отличается от пути в однородной тонкой пленке. Но в случае поверхностных электромагнитных волн (ПЭВ), в частности поверхностных плазмон-поляритонов (ППП), разница становится значительной. Энергия поля ППП уменьшается экспоненциально с удалением от поверхности раздела «металл-диэлектрик», в результате интенсивность локального электрического поля ППП может быть значительно выше, чем у падающей объемной волны. Это делает ППП очень чувствительными к слоям, расположенным рядом с поверхностью, на которой они возбуждены [4]. Глубина проникновения поля ППП пропорциональна длине волны возбуждающего излучения, но, поскольку поле ППП имеет экспоненциальный характер, интегральный вклад от взаимодействия с полем для оптических констант слоев, расположенных на разной глубине, для каждой длины волны будет различным [5]. При наблюдении условий возбуждения ППП в отраженном свете наблюдается значительное (практически до нуля) ослабление интенсивности света, вследствие перехода объемной волны в поверхностную. Это явление называют поверхностным плазмонным резонансом (ППР). Измерения с помощью метода ППР на различных длинах волн позволяют восстановить оптический профиль тонких пленок [6].

В нашей работе [7] был предложен и кратко описан алгоритм определения профиля комплексного показателя преломления тонкого градиентного слоя методом ППР. В данной работе мы подробно рассмотрим принцип работы усовершенствованного алгоритма определения профиля градиентного слоя.

\* anisimov.av@ntcup.ru

† lobastov.sa@ntcup.ru

‡ khasanov@ntcup.ru

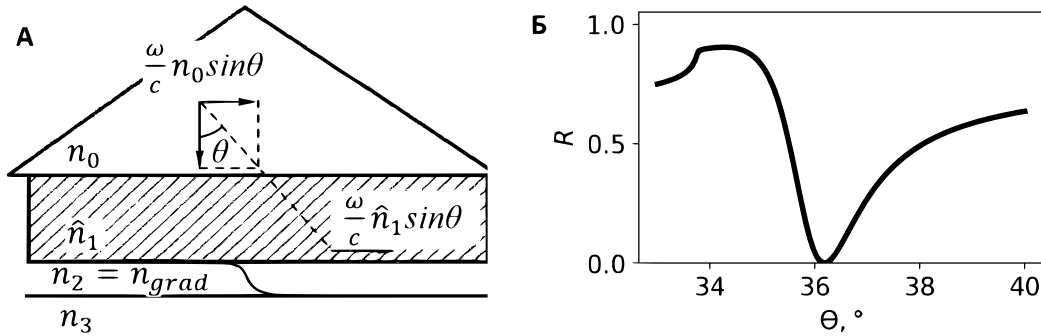


Рис. 1. Геометрия Кречмана для наблюдения ППР: *a* — схема взаимного расположения слоев, где  $n_0$  — показатель преломления призмы,  $\hat{n}_1$  — комплексный показатель преломления металла,  $n_2$  — градиентный слой, функция, зависящая от глубины,  $n_3 = 1$  — показатель преломления воздуха,  $\theta$  — угол падения в призме; *б* — график резонансного провала, соответствующий возбуждению ППП

### 1. МЕТОД РЕШЕНИЯ ЗАДАЧИ

Простые и эффективные методы возбуждения поверхностных плазмон-поляритонов (ППП) включают использование призмных схем, таких как геометрии Кречмана или Отто [8]. Результаты работы предлагаемого алгоритма не зависят от выбранной геометрии. В геометрии Кречмана *p*-поляризованный свет падает на призму НПВО, на основание которой нанесен металлический тонкий слой с исследуемым покрытием под углом, превышающим угол полного внутреннего отражения (рис. 1, *a*). В эксперименте в случае геометрии Кречмана исследуемый образец (градиентный слой) наносится на подложку, покрытую тонким металлическим слоем. Материал подложки выбирается таким образом, чтобы его показатель преломления был близким к показателю преломления призмы. Подложка соединяется с призмой с помощью согласующей жидкости, показатель преломления которой близок к показателю преломления призмы и подложки. В случае геометрии Отто исследуемый образец наносится на подложку из проводящего материала, а призма отделена от образца воздушным зазором, который не превышает длину волны используемого излучения.

В качестве примера рассмотрим следующую систему: призма из стекла  $n_0 = 1.8$ , слой золота  $n_1 = 0.16$  и  $k_1 = 3.6$  толщиной 30 нм, неизвестный градиентный слой толщиной 10 нм и воздух.

При выполнении условий возбуждения ППП на графике наблюдается резонансный провал (рис. 1, *б*). Положение и форма резонансной кривой сильно зависят от оптических констант многослойной системы, включая градиентный слой. Однако эта зависимость является нелинейной и многопараметрической, что затрудняет аналитический анализ для восстановления оптических констант градиентного слоя. Задача алгоритма состоит в подборе оптических констант градиентного слоя, которые наиболее точно описывают полученную экспериментальную зависимость. Эту задачу предлагается решить с помощью численного метода опти-

мизации BOBYQA (Bound Optimization BY Quadratic Approximation), предложенного Пауэллом [9].

Для моделирования оптического профиля неизвестного градиентного слоя предлагается использовать эрмитов кубический интерполянт (PCNIP, Piecewise Cubic Hermite Interpolating Polynomial) [10].

После интерполяции профиля используется функция расхождения для оценки близости модельных значений сплайн-интерполяции с экспериментальными:

$$DF = \sum_j \frac{(\hat{R}(\theta, n_\infty) - R(X, \theta, n_\infty))^2}{(\hat{R}(\theta, n_\infty) + 0.3)(R(X, \theta, n_\infty) + 0.3)} \quad (1)$$

где  $\hat{R}(\theta, n_\infty)$  — экспериментальные наборы коэффициентов отражения на данной длине волны при различных показателях преломления внешней среды  $n_\infty$  в диапазоне углов  $\theta$ , при которых наблюдается ППР;  $R(X, \theta_j, n_\infty)$  — наборы коэффициентов отражения для системы с искомым градиентным слоем на той же длине волны при тех же углах и показателях преломления внешней среды, что и для экспериментальных данных,  $X$  — вектор, содержащий узлы эрмитова кубического интерполянта  $\{\hat{n}_1, \dots, \hat{n}_N\}$ , являющиеся комплексными показателями преломления  $\hat{n}_j = n_j + ik_j$ . Функция  $DF$  нормируется таким образом, что вклад точек профилей отражения, значение которых ниже 0.7, усиливается, а вклад остальных ослабляется. Это делает значения коэффициента отражения  $R$  при углах, на которых нет возбуждения ППП, незначительными. Для сканирования по внешней среде  $n_\infty$  предлагается помещать на внешнюю поверхность каплю жидкости с известным показателем преломления. Затем с помощью метода оптимизации находится такой вектор  $X$ , для которого значение функции расхождения  $DF$  будет минимально. Для повышения точности алгоритма проводится угловое сканирование и восстановление профиля на нескольких длинах волн  $\lambda_i$ . Найденные профили усредняются для восстановления наиболее точного вида оптического профиля градиентного тонкого слоя.

Вектор  $X$  представляет собой модель оптического профиля тонкого градиентного слоя в процессе моделирования. Он содержит значения оптических параметров, но не включает координаты глубины. Это связано с тем, что изменение глубины каждого узла сплайна происходит только в области между двумя соседними узлами, что вносит незначительный вклад в функцию расхождения  $DF$  по сравнению с минимизацией по значению оптического параметра  $n$ . Учитывая, что минимизация по глубине точки занимает столько же времени, сколько и минимизация по значению параметра, было решено отказаться от варьирования глубины точек в алгоритме и расположить их по глубине равномерно. При этом первое значение вектора  $X$  находится на границе раздела сред с металлом, а последнее — на границе с внешней средой.

В качестве модели градиентного слоя выбран эрмитов кубический интерполянт (Piecewise Cubic Hermite Interpolating Polynomial, РСНIP), поскольку его узлы полностью определяют область значений полученной кривой. Это важно для решения задачи, так как большинство сплайнов интерполяции могут неравномерно деформироваться при равномерных изменениях координаты одного узла и непредсказуемо вести себя в области между узлами.

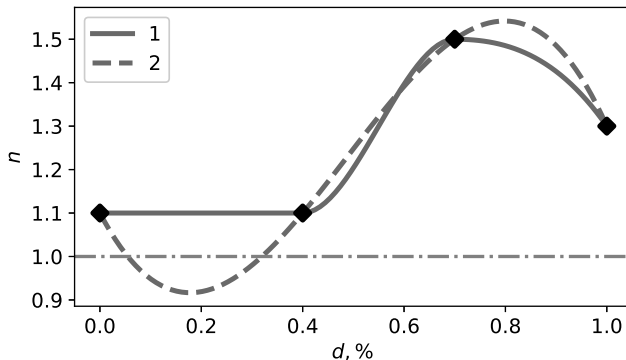


Рис. 2. Сравнение формы интерполяционных кривых РСНIP и кубического сплайна. Черными квадратами показаны узлы построения сплайнов.  $d$  — глубина в слое

Для иллюстрации этого утверждения на рис. 2. показано сравнение сплайна РСНIP и кубического сплайна. Основываясь на расположении узлов сплайнов, можно предположить, что при удалении от нуля по оси  $x$  должно наблюдаться плато, а затем гладкий переход до  $\sim 1.5$ , что соблюдается для сплайна РСНIP. Однако кубический сплайн, построенный по тем же узлам, демонстрирует резкие выбросы, которые могут приводить к значениям показателя преломления  $n$  меньше единицы, что не имеет физического смысла для диэлектрика. Подобное поведение сплайна стало бы дополнительной сложной задачей для моделирования, поэтому предпочтение для интерполяции было отдано РСНIP.

Расчет коэффициента отражения со смоделированным градиентным слоем происходит численно с ис-

пользованием матриц переноса [11], связывающих световые потоки, идущие в разных направлениях в смежных слоях. Градиентный слой представляется в виде набора однородных слоев и рассчитывается с использованием того же формализма.

## 2. АЛГОРИТМ ОПРЕДЕЛЕНИЯ ПРОФИЛЯ ГРАДИЕНТНОГО СЛОЯ НА ОДНОЙ ДЛИНЕ ВОЛНЫ

Рассматривая уравнение (1) становится понятно, что основная сложность описанного выше метода состоит в поиске глобального минимума функции расхождения  $DF$ . Если есть только два неизвестных параметра  $n$  и  $k$ , т. е. когда слой считается однородным, функция расхождения  $DF$  будет представлять собой некоторую поверхность в фазовом пространстве. Из-за наличия фазовых множителей в матрицах переноса, основанных на уравнениях Френеля, функция расхождения  $DF$  является шумоподобной с высокой плотностью локальных минимумов на единицу изменения оптического параметра. Поиск глобального минимума в широких пределах может потребовать многократный запуск алгоритма оптимизации по методу Пауэлла.

В случае же, когда слой является градиентным,  $n$  и  $k$  определяются по узлам сплайна и размерность пространства увеличивается незначительно. Таким образом размерность пространства поиска  $N = 2p$ , где  $p$  — количество узлов сплайна РСНIP. В пространстве поиска имеется большое число локальных минимумов, и для поиска среди них глобального минимума неоптимизированному алгоритму потребуется огромное количество времени.

Для ускорения работы алгоритма была разработана подход, состоящий из нескольких этапов. Каждый этап необходим для минимизации количества локальных минимумов в пространстве поиска. Итоговые найденные значения каждого этапа алгоритма являются начальными условиями для запуска следующего этапа.

Всего в алгоритме, схема которого показана на рис. 3, три этапа:

**Этап 1.** Искомый слой представляется как однородный и происходит поиск  $\hat{n} = n + ik$ .

**Этап 2.** Поскольку для кубического эрмитова интерполянта необходимо как минимум 4 узла, то на втором шаге профили  $n$  и  $k$  моделируются по 4-м точкам, которые расположены равномерно по глубине слоя. Плотность локальных минимумов в многомерном фазовом пространстве считается однородной. Поэтому поиск на данном этапе проводится в равномерно расширяющихся границах, чтобы при каждой итерации охватывать меньший объем фазового пространства, а значит и количество локальных минимумов, по которым проводится перебор. Этап завершается, в случае, если при расширении границ поиска итоговые значения модели существенно не изменяются.

**Этап 3.** Для обнаружения экстремумов, которые могут быть смещены по глубине относительно най-

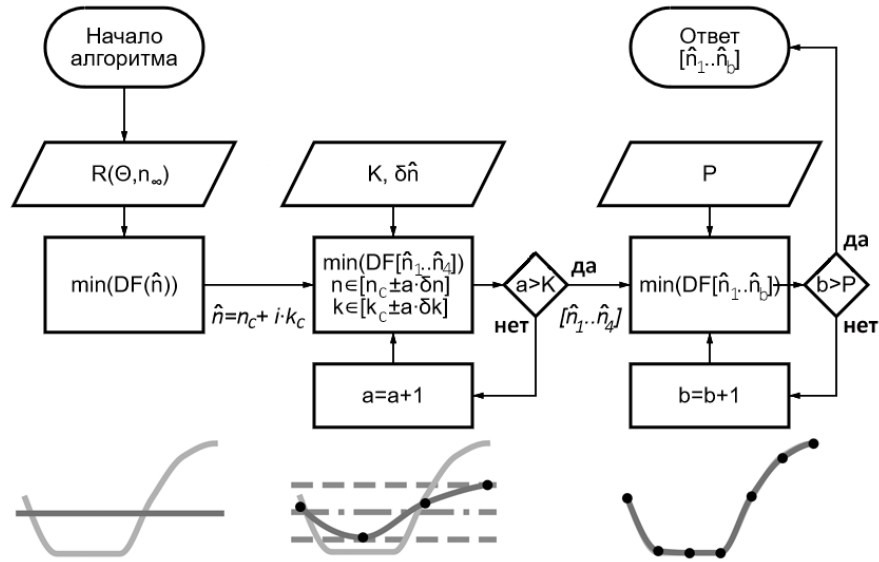


Рис. 3. Схема алгоритма поиска оптического профиля тонких градиентных пленок методом ППР. Здесь  $R(\theta, n_\infty)$  — профили коэффициентов отражения в зависимости от угла  $\theta$  для нескольких показателей преломления внешней среды  $n_\infty$ ,  $K$  — число шагов уширения границ поиска,  $\delta\hat{n}$  — шаг уширения,  $P$  — количество итераций для увеличения числа узлов сплайна. Внизу приведены модели градиентного слоя, полученные в результате выполнения каждого этапа алгоритма

денных, в модель добавляются дополнительные узлы сплайна между каждой парой соседних и проводится минимизация функции расхождения  $DF$ . Этот процесс повторяется несколько раз, что позволяет постепенно получить оптический профиль, который максимально приближен к экспериментальному.

### 3. МНГОВОЛНОВОЙ АЛГОРИТМ ОПРЕДЕЛЕНИЯ ПРОФИЛЯ ГРАДИЕНТНОГО СЛОЯ

Алгоритм, описанный выше, способен восстановить оптический профиль тонкого градиентного слоя. Однако если на одном из начальных этапов моделированный профиль значительно отклоняется от искомого, то на последующих этапах это отклонение может увеличиваться, приводя к значительному расхождению с искомым профилем. Чтобы учесть такие ситуации и повысить стабильность работы алгоритма, восстановление профиля проводится с использованием нескольких длин волн.

Многоволновой алгоритм восстановления профиля градиентного слоя работает следующим образом:

1. На каждой длине волны  $\lambda_i$  производится отдельное восстановление профиля градиентного слоя, что приводит к получению набора восстановлен-

ных профилей  $\hat{n}_i(x)$  на каждой длине волны.

2. Вычисляется средний профиль как среднее значение отдельных восстановленных профилей на предыдущем шаге:

$$\bar{n}(x) = \frac{\sum_i \hat{n}_i(x)}{i}$$

среднеквадратичное отклонение для каждого  $\hat{n}_i(x)$ :

$$\delta\hat{n}_i = \int_0^1 (\bar{n}(x) - \hat{n}_i(x))^2 dx$$

и среднее значение среднеквадратичных отклонений  $\overline{\delta\hat{n}_i}$ .

3. Исключаются результаты работы алгоритма, которые с большой вероятностью являются неудачными. Для этого из выборки удаляются  $\hat{n}_i(x)$ , для которых  $\delta\hat{n}_i > 1.2\overline{\delta\hat{n}_i}$ .
4. С учетом новой выборки повторно вычисляется средний профиль.
5. Используя значения, полученные на предыдущем этапе, в качестве начальных условий производится минимизация функции расхождения с учетом всех длин волн и всех внешних сред:

$$DF = \sum_{j,k,n} \frac{\left( R(X, \theta_j, n_{\infty k}, \lambda_n) - \hat{R}(\theta_j, n_{\infty k}, \lambda_n) \right)^2}{\left( R(X, \theta_j, n_{\infty k}, \lambda_n) + 0.3 \right) \left( \hat{R}(\theta_j, n_{\infty k}, \lambda_n) + 0.3 \right)}$$

Для демонстрации работы многоволнового алгоритма проведем восстановление по пяти длинам волн: 500, 550, 600, 650 и 700 нм для схемы из исходного примера на рис. 1. Для сравнения на рис. 4 показан результат восстановления по одной из длин волн и итоговый результат.

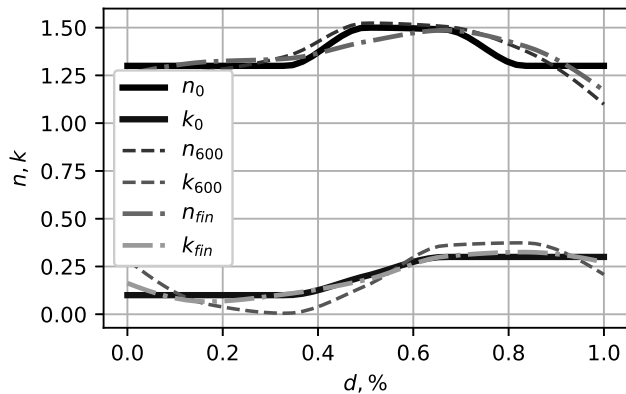


Рис. 4. Сравнение восстановленных профилей оптических параметров на 600 нм ( $n_{600}$  и  $k_{600}$ ) и конечных профилей  $n_{fin}$  и  $k_{fin}$  с исходными профилями  $n_0$  и  $k_0$

Сравнивая относительные ошибки восстановления, представленные в таблице для каждой длины волны отдельно и для итогового многоволнового результата, можно увидеть, что алгоритм, работающий с несколькими длинами волн, дает более точные результаты.

Таблица. Относительные погрешности восстановления оптических профилей

$\lambda$	$\delta_n, \%$	$\delta_k, \%$
500	0.19	0.03
550	0.26	0.04
600	0.44	0.03
650	0.13	0.07
700	0.35	0.08
Многоволновой	0.12	0.03

Для повышения точности алгоритма рекомендуется использовать не менее четырех-пяти длин волн, чтобы при возникновении расхождений в одном из решений его можно было исключить из итоговой выборки. Чем большее число длин волн мы используем, тем точнее работает алгоритм. Отметим также, что принцип работы алгоритма справедлив и для других диапазонов электромагнитного спектра, кроме видимого, таких как ТГц и ИК диапазоны.

## ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В данной работе описан алгоритм определения профиля показателя преломления  $n$  и коэффициента экстинкции  $k$  по глубине для тонких градиентных пленок. Рассмотрены физические и математические аспекты работы алгоритма. Для восстановления оптического профиля градиентной тонкой пленки используются измерения при сканировании по углу, длине волны и внешней среде. Искомый оптический профиль аппроксимируется кубическим эрмитовым интерполянтном РСНП по узловым точкам. Координаты этих точек находятся минимизацией функции расхождения и последовательным сужением области поиска глобального минимума.

Представленный алгоритм позволяет с высокой точностью исследовать оптические профили тонких градиентных слоев, полученных, например, в результате осаждения нескольких веществ с переменной во времени пропорцией между ними, либо в процессе диффузии, что позволяет изучать диффузионные и другие процессы, влияющие на однородность тонкого слоя.

Работа выполнена при финансовой поддержке Минобрнауки России в рамках Государственного задания FFNS-2022-0009. Результаты работы получены с использованием оборудования Центра коллективного пользования Научно-технологического центра уникального приборостроения РАН (НТЦ УП РАН).

- [1] Stenzel O. The Physics of Thin Film Optical Spectra: An Introduction. 2nd ed. Switzerland, Cham: Springer International Publishing, 2016. 352 p.
- [2] Lowdermilk W.H., Milam D. // Appl. Phys. Lett. American Institute of Physics. **36**, N 11. 891. (1980).
- [3] Shvartsburg A.B., Maradudin A.A. Waves in gradient metamaterials. Singapore: World Scientific, 2013. 328 p.
- [4] Климов В.В. Наноплазмоника. М.: Физматлит, 2010. 480 с.
- [5] Anisimov A.V., Khasanov I.S. // J. Phys.: Conf. Ser. IOP Publishing. **2091**, N 1. 012067. (2021).
- [6] Khasanov I.S., Knyazev B.A., Lobastov S.A. et al.//

Materials. Multidisciplinary Digital Publishing Institute, **16**, N 5. 1820. (2023).

- [7] Anisimov A.V., Khasanov I.Sh. // Determination of the Complex Refractive Index Profile of the Thin Gradient Layer by Surface Plasmon Resonance. 2022 International Conference on Information, Control, and Communication Technologies (ICCT). 1–4. (2022).
- [8] Kretschmann E., Raether, H. Notizen // Zeitschrift für Naturforschung A. **23**, N 12. 2135. (1968).
- [9] Powell M. J. D. The BOBYQA algorithm for bound constrained optimization without derivatives / Cambridge NA Report NA2009/06, University of Cambridge,

Cambridge. V. **26**. 2009.

[10] Нэи С., Каханер Д., Моулер К. Численные методы и математическое обеспечение. М.: Мир, 1998. 575 с.

[11] Мэскау Т.Г., Лакхтакиа А. // The Transfer-Matrix

Method in Electromagnetics and Optics // Synthesis Lectures on Electromagnetics. V.1, N 1. P. 1. (2020).

## Algorithm for determining the optical profile of thin gradient-index films via surface plasmon resonance

A.V. Anisimov<sup>a</sup>, S.A. Lobastov<sup>b</sup>, I.S. Khasanov<sup>c</sup>

*Scientific and Technological Center of Unique Instrumentation of RAS (STC UI RAS)*

*Moscow 117342, Russia*

*E-mail: <sup>a</sup>anisimov.av@ntcup.ru, <sup>b</sup>lobastov.sa@ntcup.ru, <sup>c</sup>khasanov@ntcup.ru*

This work details the physical and mathematical foundations of an algorithm to determine the optical profile of thin gradient films using the surface plasmon resonance (SPR) method. The algorithm minimizes the discrepancy function, which quantifies the deviation between experimental data and model data of the targeted gradient layer, approximated using a cubic Hermite interpolant known as PCHIP. Powell's method optimization, implemented in Python, determines the optimal coordinates for the spline nodes approximating the gradient optical layer. To enhance stability, accuracy, and search speed, the algorithm operates in three stages. Each stage refines the search area and sets initial parameters for the subsequent stage to align closely with the targeted gradient layer. The algorithm incorporates angle, wavelength, and external environment scan data derived via SPR.

PACS: 52.70.Kz.

*Keywords:* nanooptics, surface plasmon resonance, gradient thin layer, cubic Hermitian interpolant, Powell method.

*Received 23 August 2023.*

### Сведения об авторах

1. Анисимов Александр Владимирович — стажер-исследователь, аспирант НТЦ УП РАН; e-mail: anisimov.av@ntcup.ru.
2. Лобастов Сергей Александрович — аспирант НТЦ УП РАН; e-mail: lobastov.sa@ntcup.ru.
3. Хасанов Илдус Шевкетович — канд. физ.-мат. наук, ст. науч. сотрудник; e-mail: khasanov@ntcup.ru.