

03 Эллипсометрия металлических пленок в условиях аномального скин-эффекта

© А.Б. Сотский¹, Е.А. Чудаков¹, Л.И. Сотская²

¹ Могилевский государственный университет имени А.А. Кулешова,
212022 Могилев, Республика Беларусь

² Белорусско-Российский университет,
212000 Могилев, Республика Беларусь

e-mail: ab_sotsky@mail.ru

Поступила в редакцию 26.02.2021 г.

В окончательной редакции 28.02.2021 г.

Принята к публикации 19.03.2021 г.

Сформулированы интегральные уравнения Фредгольма второго рода, описывающие поля волн ТЕ- и ТМ-поляризации в металлических пленках с учетом аномального скин-эффекта. Уравнения допускают численное решение методом квадратур. Исследованы электрические поля в золотых и алюминиевых пленках, расположенных на кремниевой подложке, и угловые зависимости поляризационных углов отраженного от пленок света. Установлено, что для решения обратной задачи многоугловой эллипсометрии металлических пленок с использованием приближения нормального скин-эффекта характерна нестабильность восстановленного комплексного показателя преломления металла при изменении толщины металлической пленки.

Ключевые слова: металлическая пленка, аномальный скин-эффект, интегральные уравнения, многоугловая эллипсометрия.

DOI: 10.21883/OS.2021.07.51080.1847-21

Введение

При эллипсометрических исследованиях металлических пленок металл, как правило, рассматривается как среда с комплексной диэлектрической проницаемостью ϵ . Однако такой подход нельзя считать бездефектным, поскольку при решении обратных задач эллипсометрии он приводит к зависимости ϵ от толщины пленки [1,2]. Данный подход основан на классической модели Друде–Зинера (модели нормального скин-эффекта), которая использует допущение о пространственно-локальной связи между плотностью тока свободных электронов \mathbf{j} и напряженностью электрического поля \mathbf{E} . Но, как известно, такое допущение может быть корректным при условии, что средняя длина свободного пробега электрона много больше толщины скин-слоя [3]. Последнее условие может нарушаться в видимом и ультрафиолетовом диапазонах длин волн [3]. Кроме того, металлические пленки, используемые в микроэлектронике и оптике, часто имеют толщины, меньшие, чем длина свободного пробега электрона в металле. В этом случае допущение о локальной связи между векторами \mathbf{j} и \mathbf{E} в пределах пленки также выглядит проблематичным.

Более корректное описание взаимодействия света с металлом, учитывающее пространственную нелокальность связи векторов \mathbf{j} и \mathbf{E} , возможно в рамках теории аномального скин-эффекта, основанной на совместном рассмотрении уравнений Максвелла и кинетического уравнения Больцмана [4] и сводящей дело к решению интегро-дифференциальных уравнений для напряженности электрического поля в области металла [3,4].

Но в замкнутом виде такое решение найдено только для случая нормального падения плоской волны на поверхность полуограниченного металла [3,4]. В ситуации, представляющей интерес для эллипсометрии, когда металлическая пленка конечной толщины освещается наклонно падающими волнами ТЕ- и ТМ-поляризации теория аномального скин-эффекта существенно усложняется. В случае ТЕ-волн приближенные выражения для электрического поля в пленке и коэффициента отражения плоской волны от пленки предложены в [5,6]. В [5] интегро-дифференциальное уравнение аномального скин-эффекта для пленки на подложке сведено к неоднородному интегральному уравнению Фредгольма второго рода, которое исследовано в первом борновском приближении. В [6] решение интегро-дифференциального уравнения ищется в виде ряда Фурье, что оправдано лишь при рассмотрении периодической последовательности металлических пленок. Более сложный случай ТМ-волн с позиций аномального скин-эффекта изучен гораздо слабее и применительно к проблемам эллипсометрии до сих пор не рассматривался.

В настоящей работе развит подход, предложенный в [5]. Исследование проведено для случая диффузного рассеяния электронов проводимости границами пленки. Теория аномального скин-эффекта при наклонном падении волн ТЕ-, либо ТМ-поляризации на металлическую пленку, находящуюся на диэлектрической подложке, сведена к решению неоднородных интегральных уравнений Фредгольма второго рода относительно компонент электрического поля в пленке. В этих уравнениях за нор-

мальный скин-эффект отвечают неоднородные части, а за аномальный скин-эффект — интегральные члены. Получены выражения для коэффициентов отражения волн ТЕ- и ТМ-поляризации от структуры окисел–металлическая пленка–подложка. Для численного решения интегральных уравнений использован метод квадратур. Оценена его внутренняя сходимость. Исследованы электрические поля в золотых и алюминиевых пленках, расположенных на кремниевой подложке. Установлено, что аномальный скин-эффект сказывается главным образом на распределении по толщине металлической пленки нормальной границам пленки составляющей электрического поля. Рассчитаны зависимости от угла падения света на пленку функций поляризации углов $\text{tg } \psi$ и $\cos \Delta$ для золотых и алюминиевых пленок различной толщины в условиях аномального скин-эффекта. Эти зависимости использованы как „экспериментальные“ в вычислительных экспериментах по решению обратной задачи многоугольной эллипсоидности в рамках стандартной модели нормального скин-эффекта. Расчеты показали нестабильность результатов решения обратной задачи при изменении толщин металлических пленок.

Волны ТЕ-поляризации в металлической пленке

Пусть металлическая пленка толщины d_m находится на подложке и отделена от воздуха диэлектрическим окисным слоем толщины d_{ox} (рис. 1).

Монохроматическая плоская волна с зависимостью от времени t и координаты z вида $\exp(i\omega t - ik_0\beta z)$ (далее этот множитель в выражениях для компонент электромагнитного поля и плотности тока будет опускаться) падает на структуру из области $y > d_{ox}$ под углом γ . Здесь $\beta = \sqrt{\epsilon_a} \sin \gamma$, $k_0 = \omega/c$ — волновое число вакуума. Ось

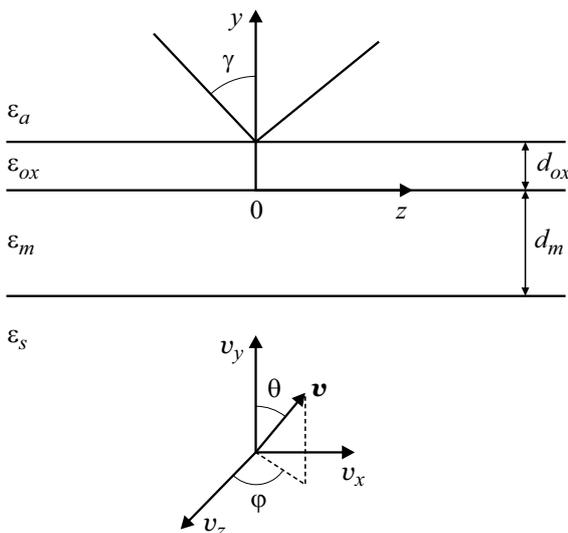


Рис. 1. Геометрия задачи и углы сферической системы координат в пространстве скорости электрона.

однородности $0x$. Относительные диэлектрические проницаемости подложки, металлической пленки, окисного слоя и воздуха равны $\epsilon_s, \epsilon_m, \epsilon_{ox}, \epsilon_a$. Здесь под ϵ_m понимается диэлектрическая проницаемость ионного остова металла, учитывающая внутренний фотоэффект [3].

В соответствии с уравнениями Максвелла при возбуждении структуры волной ТЕ-поляризации единственная отличная от нуля компонента электрического поля \mathbf{E} в металлической пленке подчиняется уравнению

$$\frac{d^2 E_x}{dy^2} + k_0^2[\epsilon_m - \beta^1]E_x = J_x, \tag{1}$$

где

$$\mathbf{J} = i\omega\mu_0\mathbf{j} + k_0^2\Delta\epsilon\mathbf{E}, \tag{2}$$

$\Delta\epsilon$ — некоторая константа, выбор которой пояснен ниже, μ_0 — магнитная проницаемость вакуума (предполагается, что в рассматриваемом оптическом диапазоне частот магнитная проницаемость всех сред одинакова и равна μ_0),

$$\mathbf{j} = -e \int_{-\infty}^{\infty} dv_x \int_{-\infty}^{\infty} dv_y \int_{-\infty}^{\infty} dv_z \mathbf{v} f_1(y, \mathbf{v}) \tag{3}$$

— вектор плотности тока, e — модуль заряда электрона, $f_1(y, \mathbf{v})$ — неравновесная функция плотности электронов в пространстве координат и скоростей.

Следуя [4], будем считать, что $f_1(y, \mathbf{v})$ подчиняется кинетическому уравнению Больцмана, записанному в приближении времени релаксации:

$$\frac{\partial f_1}{\partial y} + k_0\alpha f_1 = F, \tag{4}$$

где

$$\alpha = [i\omega\tau(1 - \beta v_z c^{-1}) + 1](\omega\tau v_y c^{-1})^{-1}, \tag{5}$$

$$F = \frac{e}{mv_y} \left(E_x \frac{\partial f_0}{\partial v_x} + E_y \frac{\partial f_0}{\partial v_y} + E_z \frac{\partial f_0}{\partial v_z} \right), \tag{6}$$

m — масса электрона, τ — среднее время свободного пробега электрона, v_x, v_y, v_z — декартовы компоненты скорости электрона \mathbf{v} ,

$$f_0 = \frac{2m^3}{h^3} \frac{1}{\exp[(\epsilon_c - \mu)(kT)^{-1}] + 1} \tag{7}$$

— равновесное распределение Ферми электронов по энергии ϵ_c , h — постоянная Планка, $\mu = h^2(2m)^{-1} \left(\sqrt[3]{3n_0(8\pi)^{-1}} \right)^2$ — предельная энергия Ферми, n_0 — концентрация свободных электронов, k — постоянная Больцмана, T — температура. Для рассматриваемых ТЕ-волн в (6) следует положить $E_y = E_z = 0$.

Для однозначного решения уравнения (4) его надо дополнить граничными условиями для f_1 при $y = 0$ и $y = -d$. Введем обозначения $f_1^+(y) = f_1(y)|_{v_y > 0}$,

$f_1^-(y) = f_1(y)|_{v_y < 0}$. Функции $f_1^{+-}(y)$ должны удовлетворять уравнению (4) и граничным условиям [4]

$$f_1^+(-d) = p_1 f_1^-(-d), \quad f_1^-(0) = p_2 f_1^+(0), \quad (8)$$

где p_1 и p_2 — вероятности зеркального отражения электрона от границ пленки $y = -d_{ox} - d_m$ и $y = -d_{ox}$. Известно, что p_1 и p_2 могут заметно отличаться от нуля только в случае атомарно чистых поверхностей металлической пленки [6]. Такой чистоты поверхности сложно добиться при напылении пленок. Кроме того, в ряде работ, касающихся рассеяния электронов проводимости поверхностью металла, адекватной экспериментам считается модель диффузного рассеяния электронов поверхностью, в которой вероятность зеркального отражения электронов принимается равной нулю [7,8]. Руководствуясь данными соображениями, мы будем полагать $p_1 = 0, p_2 = 0$. В этом случае решения уравнения (4), удовлетворяющие граничным условиям (8), имеют вид

$$\left. \begin{aligned} f_1^+(y) &= \exp(-k_0 \alpha y) \int_{-d}^y \exp(k_0 \alpha y') F(y') dy' \\ f_1^-(y) &= \exp(-k_0 \alpha y) \int_0^y \exp(k_0 \alpha y') F(y') dy' \end{aligned} \right\}. \quad (9)$$

Учитывая (3), (6), (9) и четность функции $f_0(v_y)$, находим

$$j_x(y) = -\frac{e^2}{m} \int_{-\infty}^{\infty} dv_x \int_0^{\infty} dv_y \int_{-\infty}^{\infty} dv_z \frac{v_x}{v_y} \frac{\partial f_0}{\partial v_x} \times \int_{-d}^0 \exp(-k_0 \alpha |y - y'|) E_x(y') dy'. \quad (10)$$

Переходя в (10) к сферическим координатам v, θ, φ в пространстве скорости \mathbf{v} (рис. 1) и предполагая, что электронный газ вырожден, так что [4]

$$\frac{\partial f_0}{\partial v_x} = -\frac{2m^3 \sin \theta \sin \varphi}{h^3} \delta(v - v_0),$$

где $\delta(v - v_0)$ — дельта-функция Дирака, $v_0 = \hbar m^{-1} \sqrt{3n_0(8\pi)^{-1}}$ — модуль скорости электрона на поверхности Ферми, можем записать формулу (10) в виде

$$j_x(y) = \int_{-d}^0 G_{xx}(y - y') E_x(y') dy', \quad (11)$$

где

$$G_{xx}(y - y') = \frac{4me^2 \mu^2}{h^3} \int_0^{2\pi} d\varphi \sin^2 \varphi \int_0^{\pi/2} d\theta \frac{\sin^3 \theta}{\cos \theta} \times \exp(-k_0 \alpha |y - y'|), \quad (12)$$

$$\alpha = [i\omega\tau(1 - \beta v_0 c^{-1} \sin \theta \cos \varphi) + 1](\omega\tau v_0 c^{-1} \cos \theta)^{-1}. \quad (13)$$

Решая (1) как неоднородное дифференциальное уравнение и учитывая (11), (12), приходим к интегральному уравнению

$$E_x(y) = a \exp[ik_0 k_y (y + d_m)] + b \exp[-ik_0 k_y (y + d_m)] + \frac{k_0 \Delta \varepsilon}{2ik_y} \int_{-d}^0 \exp(ik_y k_0 |y - y'|) E_x(y') dy' + \frac{\omega \mu_0}{2k_y k_0} \int_{-d}^0 dy' E_x(y') \int_{-d}^0 \exp(ik_y k_0 |y - y''|) \times G_{xx}(y'' - y') dy'', \quad (14)$$

где $k_y = \sqrt{\varepsilon_n - \beta^2}$, $\varepsilon_n = \varepsilon_m + \Delta \varepsilon$, a и b — произвольные постоянные. После интегрирования по y'' уравнение (14) преобразуется следующим образом:

$$E_x(y) = a \exp[ik_0 k_y (y + d_m)] + b \exp[-ik_0 k_y (y + d_m)] - iK \varepsilon_n \int_0^{2\pi} d\varphi \int_0^{\pi/2} d\theta \frac{\sin^3 \theta \sin^2 \varphi}{(\alpha^2 + k_y^2) \cos \theta} \int_{-d}^0 \exp(-\alpha k_0 |y - y'|) \times E_x(y') dy' + A [\exp(ik_y k_0 y) \int_{-d}^y \exp(-ik_y k_0 y) E_x(y') dy' - \exp(-ik_y k_0 y) \int_{-d}^y \exp(ik_y k_0 y) E_x(y') dy'], \quad (15)$$

где

$$K = -\frac{4\omega \mu_0 m e^2 \mu}{k_0^2 h^3 \varepsilon_n},$$

$$A = -\frac{1}{k_y} \left[K \varepsilon_n \int_0^{2\pi} d\varphi \int_0^{\pi/2} d\theta \frac{\alpha \sin^3 \theta \sin^2 \varphi}{(\alpha^2 + k_y^2) \cos \theta} + \frac{ik_0 \Delta \varepsilon}{2} \right].$$

Положим в (15) $A = 0$. Это условие конкретизирует константу $\Delta \varepsilon$:

$$\Delta \varepsilon = \frac{2iK \varepsilon_n}{k_0} \int_0^{2\pi} d\varphi \int_0^{\pi/2} d\theta \frac{\alpha \sin^3 \theta \sin^2 \varphi}{(\alpha^2 + k_y^2) \cos \theta}. \quad (16)$$

Выражение (16) определяет вклад в комплексную диэлектрическую проницаемость металла электронов проводимости. Действительно, если, учитывая неравенство $v_0 c^{-1} \ll 1$, пренебречь в (16) k_y^2 по сравнению с α^2 , а в формуле (5) пренебречь членом, содержащим β , то после элементарного интегрирования выражение (16) приобретает вид

$$\Delta \varepsilon = -i\omega \mu_0 \sigma [k_0^2 (1 + i\omega\tau)]^{-1}, \quad (17)$$

где

$$\sigma = \frac{16\pi e^2 \pi \mu \nu_0 \tau}{3h^3}$$

— статическая проводимость металла [10]. Формула (17), описывающая вклад свободных электронов в комплексную диэлектрическую проницаемость металла, может быть получена и в рамках классической теории Друде–Зинера [3]. Однако поскольку при низких частотах величина k_y^2 в (16) может быть сопоставимой с α^2 , для вычисления $\Delta\varepsilon$ целесообразно использовать точную формулу (16). Она допускает преобразование к виду

$$\Delta\varepsilon = 2\pi i K \varepsilon_n \nu_0 \tau (1 + i\omega\tau)^{-1} A^2 \times [(1 + A^2)A^{-1} \arctg(A^{-1}) - 1] [1 + O(\beta \nu_0 c^{-1})^2], \quad (18)$$

где $A = (1 + i\omega\tau)(k_0 \tau \nu_0 \sqrt{\varepsilon_n})^{-1}$ и выбрана ветвь $|\operatorname{Re}[\arctg(A^{-1})] \leq 0.5\pi$. Из (18) очевидно, что зависимость $\Delta\varepsilon$ от β , или от угла падения излучения на металлическую пленку, не существенна.

Константы a и b в (15) находим, потребовав непрерывности тангенциальных составляющих электромагнитного поля на границе раздела металлическая пленка–подложка:

$$E_x|_{y=-d_m-0} = E_x|_{y=-d_m+0},$$

$$dE_x/dy|_{y=-d_m-0} = dE_x/dy|_{y=-d_m+0}. \quad (19)$$

В согласии с условием излучения Зоммерфельда в подложке

$$dE_x/dy|_{y=-d_m-0} = ik_0 \sigma_s E_x|_{y=-d_m-0} = ik_0 \sigma_s E_x(-d_m), \quad (20)$$

где $\sigma_s = \sqrt{\varepsilon_s - \beta^2}$. Определив правые части уравнений (19) из (15) и воспользовавшись (20), получаем итоговое интегральное уравнение относительно нормированной компоненты электрического поля $\bar{E}_x(y) = E_x(y)/E_x(-d_m)$ в металлической пленке:

$$\begin{aligned} \bar{E}_x(y) = & \bar{E}_x^{(n)}(y) + \Phi_s(y, k_y) + \Phi_s(y, -k_y) \\ & - iK\varepsilon_n \int_0^{2\pi} d\varphi \int_0^{\pi/2} d\theta \frac{\sin^3 \theta \sin^2 \varphi}{(\alpha^2 + k_y^2) \cos \theta} \\ & \times \int_{-d}^0 \exp(-\alpha k_0 |y - y'|) \bar{E}_x(y') dy', \end{aligned} \quad (21)$$

где

$$\bar{E}_x^{(n)}(y) = \cos[k_0 k_y (y + d_m)] + i\sigma_s k_y^{-1} \sin[k_0 k_y (y + d_m)], \quad (22)$$

$$\begin{aligned} \Phi_s(y, k_y) = & \exp[k_0 k_y (y + d_m)] \frac{K\varepsilon_n}{2k_y} \int_0^{2\pi} d\varphi \int_0^{\pi/2} d\theta \\ & \times \frac{\sin^3 \theta \sin^2 \varphi}{(\alpha - ik_y) \cos \theta} \int_{-d_m}^0 \exp(-\alpha k_0 (y' + d_m)) \bar{E}_x(y') dy', \end{aligned} \quad (23)$$

При условии задания величин $\bar{E}_x(0)$ и $(d\bar{E}_x/dy)_{y=0}$ коэффициент отражения ТЕ-волны от структуры, изображенной на рис. 1, может быть рассчитан на основании рекуррентных соотношений [9]. Он равен

$$r_s = (SS_1^{(1)} + S_2^{(2)})(SS_1^{(2)} + S_2^{(1)})^{-1}, \quad (24)$$

где

$$S = (d\bar{E}_x/dy)_{y=0} [k\bar{E}_x(0)]^{-1},$$

$$S_1^{(1)} = ik_{ya} \sigma_{ox}^{-1} \sin(\sigma_{ox} k_0 d_{ox}) + (-1)^l \cos(\sigma_{ox} k_0 d_{ox}),$$

$$S_2^{(1)} = ik_{ya} \cos(\sigma_{ox} k_0 d_{ox}) + (-1)^l \sin(\sigma_{ox} k_0 d_{ox}),$$

$k_{ya} = \sqrt{\varepsilon_a - \beta^2}$, $\sigma_{ox} = \sqrt{\varepsilon_{ox} - \beta^2}$. Величины $\bar{E}_x(0)$ и $(d\bar{E}_x/dy)_{y=0}$ вычисляются после решения уравнения (21). В частности, согласно (21),

$$\begin{aligned} \frac{(d\bar{E}_x/dy)_{y=0}}{k_0} = & i\sigma_s \cos(k_y k_0 d_m) - k_y \sin(k_y k_0 d_m) \\ & + k_y [\Phi_s(0, k_y) - \Phi_s(0, -k_y)] + iK\varepsilon_n \int_0^{2\pi} d\varphi \int_0^{\pi/2} d\theta \\ & \times \frac{\alpha \sin^3 \theta \sin^2 \varphi}{(\alpha^2 + k_y^2) \cos \theta} \int_{-d_m}^0 \exp(\alpha k_0 y') \bar{E}_x(y') dy'. \end{aligned} \quad (25)$$

Неоднородная часть уравнения Фредгольма (21) $\bar{E}_x^{(n)}(y)$ описывает стоячую волну в металлической пленке, которая является решением задачи о нормальном скин-эффекте, имеющем место в пределе при $\omega\tau \rightarrow 0$ [3]. В этой задаче металлическая пленка рассматривается как среда с комплексной диэлектрической проницаемостью $\varepsilon_n = \varepsilon_m + \Delta\varepsilon$. Интегральные слагаемые в правой части (21) отвечают за аномальный скин-эффект, поскольку при $\omega\tau \rightarrow 0$ их ядра имеют порядок $O(\omega\tau)$ либо $O[(\omega\tau)^2]$ равномерно относительно y . Согласно (24) и (25), вклад аномального скин-эффекта в коэффициент отражения r_s имеет порядок $O(\omega\tau)$.

Для численного решения уравнения (21) мы использовали метод квадратур [11]. В нем интервал $-d_m \leq y \leq 0$ разбивается на N отрезков равной длины $\Delta y = d_m/N$. Координата левой границы j -го отрезка ($j = \bar{1}, \bar{N}$) равна $y_j = -d_m + (j - 1)\Delta y$. На данном отрезке для искомой функции $E(y)$ (в случае уравнения (21) $E_y = \bar{E}_x(y)$) используется линейная интерполяция

$$E(y) = E_j + (E_{j+1} - E_j)(y - y_j)/\Delta y, \quad (26)$$

где $E_j = E(y_j)$. Тогда внутренние интегралы в (22), (24) допускают аналитический расчет. В частности,

$$\int_{-d_m}^{y_i} \exp[-\alpha k_0(y_i - y')] E(y') dy' = V_1(i - 2) E_1 + V_2 E_i + \sum_{j=2}^{i-1} V_3(i - j - 1) E_j, \quad (27)$$

$$\int_{y_i}^0 \exp[-\alpha k_0(y' - y_i)] E(y') dy' = V_1(N - i) E_{N+1} + V_2 E_i + \sum_{j=i+1}^N V_3(j - i - 1) E_j, \quad (28)$$

где

$$V_1(I) = \exp(-k_0 \alpha I \Delta y) [1 - \exp(-k_0 \alpha \Delta y)] / (k_0^2 \alpha^2 \Delta y),$$

$$V_2 = [k_0 \alpha \Delta y + \exp(-k_0 \alpha \Delta y) - 1] / (k_0^2 \alpha^2 \Delta y),$$

$$V_3(I) = \exp(-k_0 \alpha I \Delta y) [1 - \exp(-k_0 \alpha \Delta y)]^2 / (k_0^2 \alpha^2 \Delta y).$$

Придавая y в (21) поочередно значения y_j ($j = 1, \dots, N + 1$) и учитывая (27), (28), приходим к неоднородной алгебраической системе относительно значений искомой функции в узлах интерполяции:

$$\sum_{l=1}^{N+1} M_{kl}^{(s)} E_l = E_x^{(n)}(y_k) \quad (k = 1, \dots, N + 1). \quad (29)$$

Матричные элементы $M_{kl}^{(s)}$ представляются равномерно сходящимися относительно β двойными интегралами по угловым переменным. Их явный вид нетрудно записать, подставив (27) и (28) в (21).

Волны ТМ-поляризации в металлической пленке

При возбуждении структуры, изображенной на рис. 1, волной ТМ-поляризации, во всем пространстве отличны от нуля компоненты электрического поля E_z и E_y , а $E_x \equiv 0$. Тогда, в соответствии с уравнениями Максвелла в металлической пленке

$$\frac{d^2 E_z}{dy^2} + k_0^2 k_y^2 E_z = \frac{1}{\epsilon_n} \left(k_y^2 J_z - \frac{i\beta}{k_0} \frac{dJ_y}{dy} \right), \quad (30)$$

$$E_y = \frac{1}{k_y^2} \left(\frac{J_y}{k_0^2} - \frac{i\beta}{k_0} \frac{dE_z}{dy} \right), \quad (31)$$

а на границах пленки $y = -d_m$ и $y = 0$ должны быть непрерывны E_z и величина $k_0^{-1} dE_z/dy + i\beta E_y$, пропорциональная компоненте магнитного поля H_x .

Повторение выкладок, аналогичных рассмотренным при анализе уравнения (1), позволяет свести интегро-дифференциальное уравнение (30) к интегральному уравнению

$$\begin{aligned} \bar{E}_z(y) &= \bar{E}_z^{(n)}(y) + \Phi_p(y, k_y) + \Phi_p(y, -k_y) \\ &- K \int_0^{2\pi} d\varphi \int_0^{\pi/2} d\theta \frac{\sin \theta (ik_y^2 \sin \theta \cos \theta - \alpha \beta \cos \theta)}{(\alpha^2 + k_y^2) \cos \theta} \\ &\times \int_{-d_m}^0 \exp(-\alpha k_0 |y - y'|) [\bar{E}_z(y') \sin \theta \cos \varphi \\ &+ \text{sign}(y - y') \bar{E}_y(y') \cos \theta] dy', \end{aligned} \quad (32)$$

где

$$\bar{E}_z^{(n)}(y) = \cos[k_0 k_y (y + d_m)] + \frac{ik_y \epsilon_s}{\sigma_s \epsilon_n} \sin[k_0 k_y (y + d_m)], \quad (33)$$

$$\Phi_p(y, k_y) = \exp[k_0 k_y (y + d_m)]$$

$$\begin{aligned} &\times \frac{K}{2} \int_0^{2\pi} d\varphi \int_0^{\pi/2} d\theta \frac{\sin \theta (k_y \sin \theta \cos \varphi - \beta \cos \theta)}{(\alpha - ik_y) \cos \theta} \\ &\times \int_{-d_m}^0 \exp[-\alpha k_0 (y' + d_m)] [\bar{E}_z(y') \sin \theta \cos \varphi \\ &- \bar{E}_y(y') \cos \theta] dy', \end{aligned} \quad (34)$$

$$\bar{E}_z(y) = E_z(y)/E_z(-d_m), \quad \bar{E}_y(y) = E_y(y)/E_z(-d_m). \quad (35)$$

Уравнение (32) содержит две неизвестных функции (35). Еще одно уравнение относительно этих функций получаем из (31), продифференцировав правую часть (32) по y и воспользовавшись формулами (2), (3) и (6):

$$\begin{aligned} \bar{E}_y(y) &= \bar{E}_y^{(n)}(y) + \beta k_y^{-1} [\Phi_p(y, k_y) - \Phi_p(y, -k_y)] \\ &+ \Delta \epsilon \epsilon_n^{-1} \bar{E}_y(y) - iK \int_0^{2\pi} d\varphi \int_0^{\pi/2} d\theta \\ &\times \left[1 + \frac{\beta(\beta \cos \theta + i\alpha \sin \theta \cos \varphi)}{(\alpha^2 + k_y^2) \cos \theta} \right] \sin \theta \\ &\times \int_{-d_m}^0 \exp(-\alpha k_0 |y - y'|) [\bar{E}_z(y') \text{sign}(y - y') \\ &\times \sin \theta \cos \varphi + \bar{E}_y(y') \cos \theta] dy', \end{aligned} \quad (36)$$

где

$$\begin{aligned} \bar{E}_y^{(n)}(y) = \frac{\beta}{k_y} \left\{ i \sin[k_0 k_y (y + d_m)] + \frac{k_y \varepsilon_s}{\sigma_s \varepsilon_n} \right. \\ \left. \times \cos[k_0 k_y (y + d_m)] \right\}. \end{aligned} \quad (37)$$

Выражения (32), (36) представляют собой замкнутую систему неоднородных интегральных уравнений Фредгольма второго рода, описывающих поле ТМ-поляризации в металлической пленке.

Заметим, что функции $\bar{E}_z^{(n)}(y)$ и $\bar{E}_y^{(n)}(y)$ вида (33) и (37) представляют собой компоненты электромагнитного поля, найденные в приближении нормального скин-эффекта. При рассмотрении уравнения (32) это достаточно очевидно, поскольку в пределе при $\omega\tau \rightarrow 0$ ядра интегралов в правой части (32) имеют порядок $O(\omega\tau)$ либо $O[(\omega\tau)^2]$ равномерно относительно y . Порядок $O(\omega\tau)$ имеют и функции $\Phi_p(y, \pm k_y)$ в (36). Но в случае уравнения (36) предел $\lim_{\omega\tau \rightarrow 0} \bar{E}_y(y) = \bar{E}_y^{(n)}(y)$ достигается, если только точка наблюдения y находится внутри пленки. Действительно, если в (36) считать изменение функций $\bar{E}_z(y')$, $\bar{E}_y(y')$ на интервале интегрирования $|y' - y| \sim v_0\tau$ пренебрежимо малым [3], то в пределе при $\omega\tau \rightarrow 0$ или $\alpha \rightarrow \infty$ (см. (5))

$$\int_{-d_m}^0 \exp(-\alpha k_0 |y - y'|) [\bar{E}_z(y') \text{sign}(y - y')] dy' = O[(\omega\tau)^2], \quad (38)$$

$$\int_{-d_m}^0 \exp(-\alpha k_0 |y - y'|) [\bar{E}_y(y')] dy' = \frac{2\bar{E}_y(y)}{\alpha k_0} + O[(\omega\tau)^2]. \quad (39)$$

При выполнении (38), (39) два последних слагаемых в правой части (36) сокращаются. Однако если $y \rightarrow -d_m$ либо $y \rightarrow 0$, то равенства (38), (39) нарушаются. В результате вблизи границ металлической пленки компонента электрического поля E_y может существенно отклоняться от результата теории нормального скин-эффекта. Ниже это подтверждено численными расчетами.

Формула для коэффициента отражения плоской волны ТМ-поляризации от структуры, приведенной на рис. 1, получается аналогично (24) и имеет вид

$$r_p = (PP_1^{(2)} + P_2^{(1)})(PP_1^{(1)} + P_2^{(2)})^{-1}, \quad (40)$$

где

$$P = -[k_0^{-1}(d\bar{E}_z/dy)_{y=0} + i\beta\bar{E}_y(0)]/\bar{E}_z(0),$$

$$P_1^{(l)} = \cos(\sigma_{ox} k_0 d_{ox}) + (-1)^l \frac{\varepsilon_a \sigma_{ox}}{\varepsilon_{ox} i k_{ya}} \sin(\sigma_{ox} k_0 d_{ox}),$$

$$P_2^{(l)} = \frac{\varepsilon_{ox}}{\sigma_{ox}} \sin(\sigma_{ox} k_0 d_{ox}) + (-1)^l \frac{\varepsilon_a}{i k_{ya}} \cos(\sigma_{ox} k_0 d_{ox}).$$

Коэффициент P вычисляется после решения уравнений (32), (36). В частности, дифференцируя правую часть уравнения (32) и учитывая (36), находим

$$\begin{aligned} k_0^{-1}(\bar{E}_z/dy)_{y=0} + i\beta\bar{E}_y(0) = i\varepsilon_n\beta^{-1}\bar{E}_y^{(n)}(0) + i\varepsilon_n k_y^{-1} \\ \times [\Phi_p(0, k_y) - \Phi_p(0, -k_y)] + K\varepsilon_n \int_0^{2\pi} d\varphi \int_0^{\pi/2} d\theta \\ \times \frac{i\alpha \sin^2 \theta \cos \varphi + \beta \cos \theta \sin \theta}{(\alpha^2 + k_y^2) \cos \theta} \int_{-d_m}^0 \exp(\alpha k_0 y') [\bar{E}_z(y') \\ \times \sin \theta \cos \varphi + \bar{E}_y(y') \cos \theta] dy'. \end{aligned} \quad (41)$$

Как следует из (40) и (41), при $\omega\tau \rightarrow 0$ вклад аномального скин-эффекта в коэффициент отражения r_p имеет порядок $O(\omega\tau)$.

Использование интерполяции (26) для функций $\bar{E}_z(y)$ и $\bar{E}_y(y)$ позволяет свести уравнения (32), (36) к неоднородной алгебраической системе

$$\sum_{l=1}^{2(N+1)} M_{kl}^{(p)} X_l = B_k \quad (k = 1, \dots, 2(N+1)). \quad (42)$$

Здесь $X_l = \bar{E}_z(y_l)$, $B_l = \bar{E}_z^{(n)}(y_l)$ при $l = 1, \dots, N+1$; $X_l = \bar{E}_y(y_{l-N-1})$, $B_l = \bar{E}_y^{(n)}(y_{l-N-1})$, при $l = N+2, \dots, 2(N+1)$. Матричные элементы $M_{kl}^{(p)}$ представляются равномерно сходящимися относительно β двойными интегралами по угловым переменным. Их явный вид легко найти, подставив (27) и (28) в (32), (34), (36).

Результаты расчетов

На основании разработанной вычислительной схемы мы рассчитали поля волн ТЕ- и ТМ-поляризации в металлических пленках и зависимости функций поляризаационных углов $\text{tg } \psi$ и $\cos \Delta$ от угла падения γ . Здесь

$$\text{tg } \psi = |r_p r_s|^{-1}, \quad \cos \Delta = \text{Re}(r_p r_s^{-1}) / \text{tg } \psi.$$

Исследованы золотые и алюминиевые пленки на длине волны $\lambda = 800$ nm, находящиеся на кремниевой подложке ($\varepsilon_a = 1.0003^2$, $\varepsilon_s = (3.695 - i0.0066)^2$ [12]). Используются константы металлов, приведенные в табл. 1, где $n_m - ik_m = \sqrt{\varepsilon_n}$. Как видно из табл. 1, оптические

Таблица 1. Константы металлов, использованные при расчетах [13-15]

Металл	τ , fs	$n_0 \cdot 10^{-28}$, m ⁻³	n_m	k_m
Au	27.1	5.9	0.153	4.908
Al	7.2	18.07	2.767	8.354

Таблица 2. Внутренняя сходимость вычислительной схемы

N	$\text{tg } \psi$	$\text{tg } \psi_0$	$\text{tg } \psi_n$	$\cos \Delta$	$\cos \Delta_0$	$\cos \Delta_n$
50	0.957905	—	—	-0.578713	—	—
100	0.958067	0.958121	—	-0.578778	-0.578800	—
150	0.958109	0.958142	0.963019	-0.578792	-0.578803	-0.578253
200	0.958125	0.958148	—	-0.578797	-0.578804	—
250	0.958133	0.958147	—	-0.578800	-0.578804	—
300	0.958137	0.958147	—	-0.578800	-0.578804	—

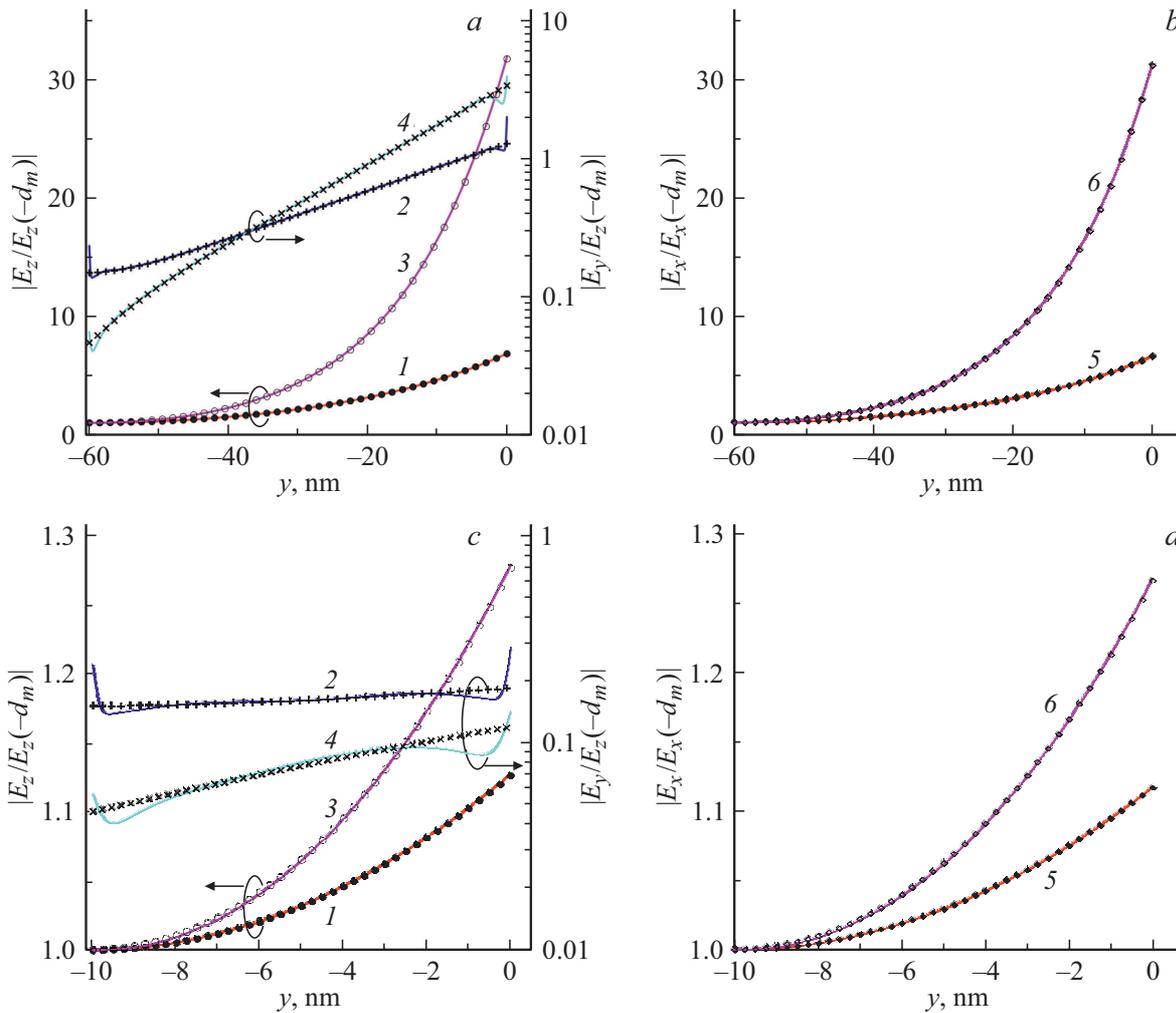


Рис. 2. Распределения компонент электрического поля в золотой (1, 2, 5) и алюминиевой (3, 4, 6) пленках толщиной 60 (a, b) и 10 nm (c, d) для волн ТМ- (a, c) и ТЕ-поляризации (b, d). Сплошные кривые — модель аномального скин-эффекта, дискретные значки — модель нормального скин-эффекта.

константы золота и алюминия существенно различаются. Выбор пленок из этих материалов объясняется, с одной стороны, их широким использованием в оптике и микроэлектронике, а с другой, возможностью оценить влияние аномального скин-эффекта на оптические поля в исследуемой структуре (рис. 1) при различных условиях, в том числе и при наличии окисного слоя на поверхности алюминиевой пленки.

Таблица 2 иллюстрирует внутреннюю сходимость разработанной вычислительной схемы. Она относится к золотой пленке с $d_m = 60$ nm и соответствует $d_{ox} = 0$, $\gamma = 70^\circ$.

Известно, что погрешность метода квадратур при решении интегральных уравнений имеет такой же порядок, как и погрешность принятой квадратурной формулы при вычислении интегралов в интегральных уравнениях [11].

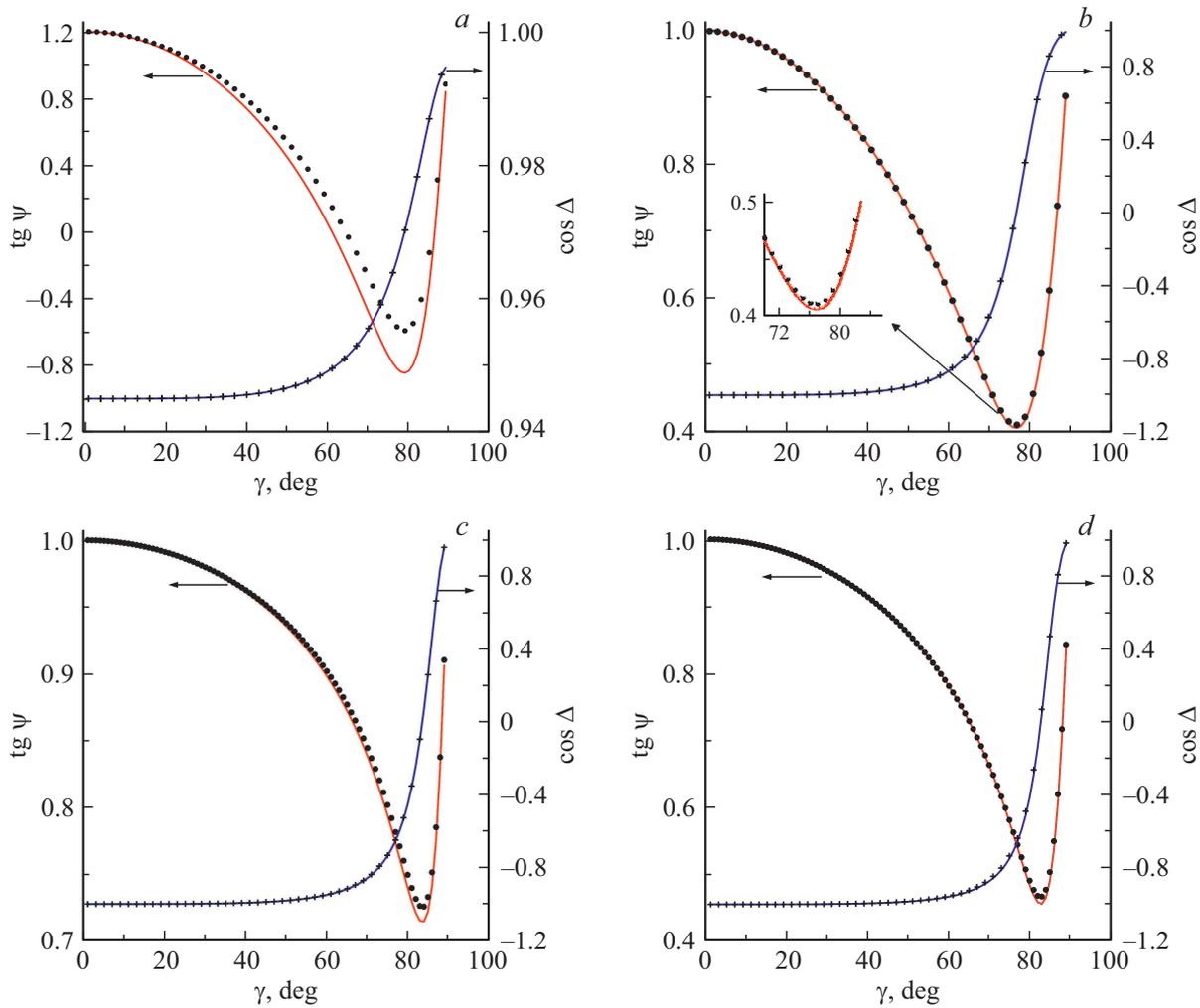


Рис. 3. Угловые зависимости функций поляризационных углов для золотых (a, b) и алюминиевых (c, d) пленок на кремниевой подложке при $d_{ox} = 0$ nm: a, c — $d_m = 60$ nm; b, d — $d_m = 10$ nm. Сплошные кривые — теория anomального скин-эффекта, дискретные значки — приближение нормального скин-эффекта.

Поэтому в случае линейной интерполяции (26)

$$f(N) = f_0 + C/N^2 + O(1/N^3), \quad (43)$$

где C — некоторая константа, $f_0 = \lim_{N \rightarrow \infty} f(N)$ — точное решение задачи, а под f понимается $\text{tg } \psi$ либо $\cos \Delta$. Выражение (43) может быть использовано для ускорения сходимости вычислительной схемы. Действительно, если рассчитать значения $f(N_1)$, $f(N_2)$ и пренебречь в (43) величинами порядка $O(1/N_{1,2}^3)$, то из (43) найдем

$$f_0 = f(N_1) + N_2^2[f(N_2) - f(N_1)](N_2^2 - N_1^2)^{-1}. \quad (44)$$

В таблице 2 под $\text{tg } \psi$ и $\cos \Delta_0$ понимаются величины, рассчитанные на основании (44) при $N_2 = N$, $N_1 = N - 50$, а через $\text{tg } \psi_n$ и $\cos \Delta_n$ обозначены $\text{tg } \psi$ и $\cos \Delta$, найденные в приближении нормального скин-эффекта, т.е. при использовании в (24) и (40)

$$\frac{(d\bar{E}_x/dy)_{y=0}}{k_0} = i\sigma_s \cos(k_y k_0 d_m) - k_y \sin(k_y k_0 d_m),$$

$$\bar{E}_x(0) = \bar{E}_x^{(n)}(0),$$

$$k_0^{-1}(d\bar{E}_z/dy)_{y=0} + i\beta\bar{E}_y(0) = ik_y^2\beta^{-1}\bar{E}_y^{(n)}(0),$$

$$\bar{E}_z(0) = \bar{E}_z^{(n)}(0).$$

Данные табл. 2 подтверждают эффективность алгоритма (44). Еще в табл. 2 можно отметить заметное расхождение значений $\text{tg } \psi$, рассчитанных в приближениях anomального и нормального скин-эффектов.

На рис. 2 представлены распределения компонент электрического поля в золотых и алюминиевых пленках, возбуждаемых волнами ТЕ- и ТМ-поляризации. Они соответствуют $N \geq 50$, $d_{ox} = 0$, $\gamma = 70^\circ$.

На рис. 2 распределения $|\bar{E}_x(y)|$, $|\bar{E}_z(y)|$, рассчитанные в рамках моделей нормального и anomального скин-эффектов, визуально неотличимы. Однако имеет место ожидаемое, согласно предыдущему разделу, заметное расхождение аналогичных распределений $|\bar{E}_y(y)|$ в окрестности границ металлических пленок

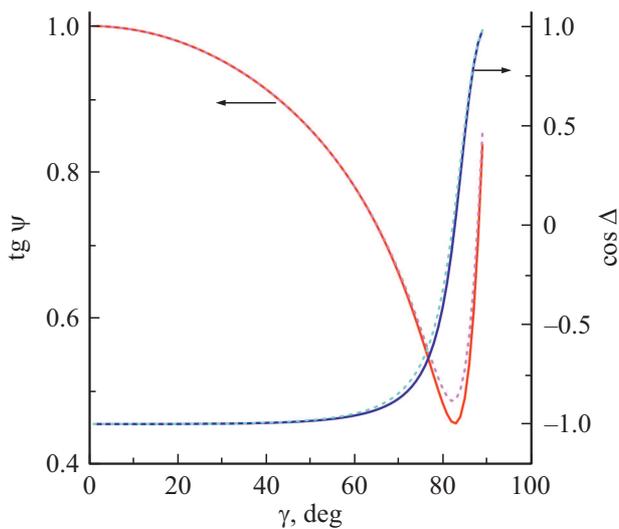


Рис. 4. Угловые зависимости функций поляризационных углов для алюминиевой пленки толщиной $d_m = 10$ nm на кремниевой подложке при наличии (штриховые кривые) и отсутствии (сплошные кривые) на границе раздела пленка–воздух окисного слоя с показателем преломления $n_{ox} = 1.7601$ и толщиной $d_{ox} = 2$ nm.

(на рис. 2, а, с распределению $|\vec{E}_x(y)|$ в случае золотой пленки отвечают значки „+“, а в случае алюминиевой пленки — „×“). Это расхождение возрастает при уменьшении толщины пленки. Аналогичная тенденция в случае ТЕ-волн ранее отмечалась в [5].

Влияние аномального скин-эффекта на функции поляризационных углов иллюстрирует рис. 3.

На рис. 3 расхождение результатов приближений нормального и аномального скин-эффектов наблюдается главным образом для функции $\text{tg } \psi(\gamma)$.

Рисунок 4 иллюстрирует трансформацию распределений $\text{tg } \psi$ и $\cos \Delta(\gamma)$, рассчитанных в рамках модели аномального скин-эффекта, при образовании окисного слоя на поверхности алюминиевой пленки.

Таблица 3 позволяет судить о погрешностях решения обратной задачи многоугловой эллипсометрии в случае использования стандартной модели нормального скин-эффекта. В таблице d_m и d_{ox} — точные толщины металлической пленки и окисного слоя; $d_m^{(r)}$, $n_m^{(r)}$, $k_m^{(r)}$, $d_{ox}^{(r)}$, $n_{ox}^{(r)}$ — соответственно толщина, показатель преломления, показатель поглощения металлической пленки, толщина и показатель преломления окисного слоя, определенные путем минимизации градиентным методом целевой функции

$$I = \sum_{i=0}^l [\text{tg } \psi(\gamma_i) - \text{tg } \psi_n(\gamma_i)]^2 + [\cos \Delta(\gamma_i) - \cos \Delta_n(\gamma_i)]^2, \tag{45}$$

где $\gamma_i = i\Delta\gamma$, $\Delta\gamma = 1^\circ$, $l = 89$, $\text{tg } \psi(\gamma_i)$, $\cos \Delta(\gamma_i)$ — функции поляризационных углов, рассчитанные в рамках модели аномального скин-эффекта при значениях констант, указанных в табл. 1. Графики данных функций приведены

Таблица 3. Решение обратной задачи многоугловой эллипсометрии в приближении нормального скин-эффекта

Пленка	d_m , nm	d_{ox} , nm	$d_m^{(r)}$, nm	$n_m^{(r)}$	$k_m^{(r)}$	$d_{ox}^{(r)}$, nm	$n_{ox}^{(r)}$
Au	60	0	60.04	0.190	4.906	0	—
	10	0	10.00	0.235	4.896	0	—
Al	60	0	54.03	2.897	8.336	0	—
	10	0	10.07	2.972	8.347	0	—
Al	60	2	59.61	2.881	8.317	1.92	1.7635
	10	2	10.03	2.925	8.355	1.95	1.6860

на рис. 3, 4. В (45) функциями параметров $d_m^{(r)}$, n_r , k_r , $d_{ox}^{(r)}$, $n_{ox}^{(r)}$ являются $\text{tg } \psi_n(\gamma_i)$ и $\cos \Delta_n(\gamma_i)$.

Как видно из табл. 3, основной дефект использования модели нормального скин-эффекта при решении обратной задачи многоугловой эллипсометрии металлической пленки состоит в нестабильности значений $n_m^{(r)}$, относящихся к пленкам разной толщины. Кроме того, среди всех восстановленных параметров структур именно для $n_m^{(r)}$ характерно наиболее заметное отклонение от исходных констант пленок, приведенных в табл. 1.

Заключение

Сформулированы неоднородные интегральные уравнения Фредгольма второго рода, описывающие аномальный скин-эффект в металлической пленке для волн ТЕ- и ТМ-поляризации. Численное решение уравнений получено методом квадратур. Оценены погрешности стандартного приближения нормального скин-эффекта при расчете электрических полей в золотых и алюминиевых пленках и при решении обратной задачи многоугловой эллипсометрии для данных пленок.

Представляет интерес решение обратных оптических задач об определении параметров металлических пленок с использованием развитой теории аномального скин-эффекта. Стимулом к разработке соответствующих алгоритмов является нестабильность восстанавливаемой комплексной диэлектрической проницаемости при изменении толщины металлических пленок, которая имеет место при решении обратных оптических задач с использованием модели нормального скин-эффекта. В случае многоугловой эллипсометрии этот дефект проиллюстрирован расчетами настоящей работы. Согласно экспериментальным данным [1,2,16], он наблюдается также при спектральной эллипсометрии и спектрофотометрии пленок из различных металлов. Применение для решения обратных оптических задач эллипсометрии и спектрофотометрии металлических пленок разработанной модели аномального скин-эффекта может открыть возможности раздельной оценки вкладов в комплексную

диэлектрическую проницаемость металла $\varepsilon_n = \varepsilon_m + \Delta\varepsilon$ его ионного остова (ε_m) и электронов проводимости ($\Delta\varepsilon$, формула (18)) и определить характеристики электронного газа μ , τ , v_0 . В случае обработки экспериментальных данных, полученных методами спектральной эллипсомерии и спектрофотометрии соответствующие расчеты предполагают использование некоторой дисперсионной модели для функции $\varepsilon_m(\lambda)$ (например, модели Лоренца [1]). Однако численный расчет значений r_s и r_p при фиксированных γ и λ на персональном компьютере с использованием сформулированного выше алгоритма занимает около минуты, что затрудняет его использование для решения обратных оптических задач. Данные задачи требуют дополнительных исследований по оптимизации алгоритма.

Финансирование работы

Работа выполнена при финансовой поддержке Государственной программы научных исследований Республики Беларусь 1.15 „Фотоника и электроника для инноваций“.

Конфликт интересов

У авторов конфликта интересов нет.

Список литературы

- [1] Lin J., Jiang H., Gu H., Chen X., Zhang C., Liao G., Liu S. // *Physica Scripta*. 2019. V. 94. P. 085802-1. doi 10.1088/1402-4896/ab1606
- [2] Минкович В.П., Сотский А.Б., Шилов А.В., Сотская Л.И. // *Журнал прикл. спект.* 2019. Т. 86. № 1. С. 128; *Minkovich V.P., Sotsky A.B., Shilov A.V., Sotskaya L.I.* // *J. Applied Spectroscopy*. 2019. V. 86. N 1. P. 112. doi 0021-9037/19/8601-0112
- [3] Соколов А.В. Оптические свойства металлов. М: ГИФМЛ, 1961. 464 с.
- [4] Reuter G.E.H., Sondheimer E.H. // *Proc. R. Soc. Lond.* 1948. V. 195. P. 336. doi 10.1098/rspa.1948.0123
- [5] Сотский А.Б., Парашков С.О., Василенко А.Н. // *Проблемы физики, математики и техники*. 2015. Т. 22. № 1. С. 21.
- [6] *Iakushev D., Lopez-Aguayo S.* // *JOSA B*. 2017. V. 34. N 11. P. 2421. doi: 10.1364/JOSAB.34.002421
- [7] *Bennett H.E., Bennett J.M., Ashley E.J., Motyka R.J.* // *Phys. Rev.* 1968. V. 165. N 3. P. 755–765. doi 10.1103/PhysRev.165.755
- [8] *Dingle R.B., Dingle R.B.* // *Physica*. 1953. V. 19. Issues 1–12. P. 348. doi 10.1016/S0031-8914(53)80036-4
- [9] Сотский А.Б. Теория оптических волноводных элементов. Могилев: УО „МГУ им. А.А. Кулешова“. 2011. 456 с.
- [10] Румер Ю.Б., Рывкин М.Ш. Термодинамика, статистическая физика и кинетика. М.: Наука, 1972. 400 с.
- [11] Крылов В.И., Бобков В.В., Монастырный П.И. Вычислительные методы. Т. 2. М.: Наука, 1977. 399 с.
- [12] *Palik E.D.* Handbook of Optical Constants of Solids. Washington, D.C.: Naval Research Laboratory, 1985. P. 547. doi 10.1016/C2009-0-20920-2
- [13] *Johnson P.B., Christy R.W.* // *Phys. Rev. B*. 1972. V. 6. N 12. P. 4370. doi 10.1103/physrevb.6.4370
- [14] *Rakić A.D.* // *Applied Optics*. 1995. V. 34. N 22. P. 4755. doi 10.1364/AO.34.004755
- [15] *Echániz T., Pérez-Sáez R.B., Tello M.J.* // *J. Appl. Phys.* 2014. V. 116. P. 093508. doi 10.1063/1.4894169
- [16] *Kangarlow H., Aghgonband M.M.* // *Opt. Spectrosc.* 2013. V. 115. N 5. P. 753. doi 10.1134/S0030400X13110088