

С.Б. Астафьев, Б.М. Щедрин, Л.Г. Янусова

РЕШЕНИЕ ОБРАТНОЙ ЗАДАЧИ ВОССТАНОВЛЕНИЯ СТРОЕНИЯ ПЛЕНКИ ПО ДАННЫМ РЕФЛЕКТОМЕТРИИ

Введение

Новейшие нанотехнологии наряду с компьютерно-информационными технологиями и биоинженерией образуют фундамент научно-технической революции XXI века. В развитых странах это привело к разработке широкомасштабных программ научных исследований. Только в США с 2003 года комплексная программа, названная Национальной нанотехнологической инициативой, финансируется из госбюджета почти миллиардом долларов в год. Аналогичные программы приняты Европейским союзом, Японией, Китаем и рядом других стран.

Широкое внедрение в промышленность соответствующих пленочных материалов должно существенно увеличить ресурс режущих и обрабатывающих материалов, сроки и мощность работы двигателей, повысить производительность систем передачи, обработки и хранения информации; во много раз увеличить эффективность солнечных батарей и многое, многое другое.

С развитием нанотехнологий, требующих широкого использования многослойных пленочных структур, возрастает потребность в надежных методах контроля толщины, электронной плотности и других параметров слоев, так как даже незначительное отклонение от заданных величин параметров может вызвать существенные изменения характеристик изготавливаемых элементов. Основным методом изучения поперечного профиля электронной плотности многослойных пленок является метод рентгеновской рефлектометрии [1].

1. Изучение структуры многослойных плёнок по данным рефлектометрии

Интенсивность зеркального отражения от поверхности тонкой плёнки, измеряемая в рефлектометрии может быть определена как квадрат модуля амплитуды рассеяния R : $I = R \cdot R^*$.

В свою очередь, амплитуда зеркального рассеяния излучения от тонкой многослойной плёнки почти на всём диапазоне углов скользящего падения и рассеяния $\vartheta - 2\vartheta$ (за исключением области полного внешнего

отражения) является линейной функцией комплексной рассеивающей плотности $\rho(z)$, изменение которой по толщине плёнки зависит от её организации на молекулярном уровне и может быть определяющим параметром при формировании специфических наноразмерных эффектов в плёнке. Именно поэтому использование методов определения распределения электронной плотности необходимо при разработке перспективных технологических процессов и при оценке качества слоистых структур, создаваемых с применением нанотехнологий. В общем виде амплитуду зеркального рассеяния R можно выразить через $\rho(z)$:

$$R(q) = \frac{4\pi \cdot r_e}{q} \cdot \int \rho(z) \cdot e^{iqz} dz, \quad (1)$$

где $q = \frac{4\pi \cdot \sin \vartheta}{\lambda}$, λ – длина волны падающего излучения, r_e – радиус электрона.

Знание амплитуды рассеяния гарантировало бы возможность восстановления профиля электронной плотности в поперечном сечении плёнки. Однако, традиционно проводимые рефлектометрические эксперименты позволяют измерять лишь интенсивность рассеяния. Этот факт вынуждал исследователей переходить к разработке методов конструирования модели профиля, расчётная кривая рассеяния от которой I_{mod} наилучшим образом приближается к экспериментальной кривой от исследуемого образца I_{exp} . Данная задача является нелинейной и не гарантирует получения однозначного решения в каждом конкретном случае, хотя в процессе развития в теории рефлектометрии создано немало способов приближения модельных кривых рассеяния к экспериментальным на базе минимизации функционала χ^2 :

$$\chi^2 = \frac{1}{M - N} \sum_{i=1}^M w_i (I^{\text{exp}}(q_i) - I^{\text{mod}}(q_i))^2, \quad (2)$$

где M – число точек измерений, N – число параметров модели, w_i – выбранная весовая функция.

Профиль рассеивающей плотности $\text{Re } \rho(z)$ представляется в виде совокупности n однородных слоев конечной толщины (общей толщиной D), нанесенных на полубесконечную подложку. Каждый i -тый слой характеризуется четырьмя параметрами: $\delta_i = (\lambda^2 r_e / 2\pi) \cdot \text{Re } \rho_i$ – параметр, пропорциональный рассеивающей плотности, $\beta_i = (\lambda^2 r_e / 2\pi) \cdot \text{Im } \rho_i$ – параметр, отвечающий за поглощение излучения, $d_i = z_{i+1} - z_i$ – толщина

слоя, σ_i – шероховатость, имитирующая статистическое нарушение электронной плотности на границах раздела слоев.

Распределение рассеивающей плотности для заданного набора слоев имеет вид:

$$\rho(z) = \sum_{i=1}^n \rho_i \left[f \left\{ -\frac{z - z_i}{\sigma_i} \right\} - f \left\{ -\frac{z - z_{i-1}}{\sigma_{i-1}} \right\} \right] + \rho_s, \quad (3)$$

где ρ_s – плотность подложки, z_i – координата границы раздела $i+1$ -го и i -го слоев, $z_0 = 0$, а $f(z)$ определяется формулой:

$$f(z) = \frac{1}{\pi} \int_{-\infty}^z \exp(-x^2/2) dx.$$

Часто многослойную пленку можно представить в виде определенной последовательности l слоев, называемой элементарной слоевой ячейкой пленки, повторяющейся c раз: $n = c \cdot l$. Тогда величины параметров каждого слоя устанавливают непосредственно по рефлектометрической кривой, заменяя в модели общее число n слоев параметрами: c – количество повторений элементарной ячейки (*cell*) и l – количество слоев, на которые разбивают элементарную ячейку.

Для решения этой нелинейной задачи привлекается информация о технологических особенностях и химическом составе исследуемых плёнок. Однако до сих пор практически не было методов оценки правильности получаемых таким образом решений.

В данной работе описана возможность использования инвариантов рефлектометрических кривых, для проверки адекватности профиля электронной плотности, рассчитываемого традиционными методами, а так же предложена принципиально новая модель рефлектометрического эксперимента, основанная на гипотезе идентичности структуры плёнок, сформированных на разных подложках по одной технологии.

В тех случаях, когда это допущение оправдано, появляется возможность в результате рефлектометрических измерений получить две кривых интенсивности рассеяния от двух образцов с плёнками одинаковой структуры, сформированными на подложках разной электронной плотности. Этих данных оказывается достаточно для вычисления амплитуды рассеяния от собственно плёнки, откуда определяется профиль электронной плотности в поперечном сечении плёнки.

2. Новая модель рефлектометрического эксперимента

Амплитуда рассеяния R_{yf} от плёнки на подложке (*substrate-film*) с плотностями пленки $\rho_f(z)$ и подложки $\rho_s = const$ может быть записана

$$R_{yf}(q) = \frac{4\pi \cdot r_e}{q} \int_{-\infty}^{\infty} \rho(z) \exp(iqz) \cdot dz =$$

$$= \frac{8\pi^2}{\lambda^2 q} \left(\int_{-\infty}^0 \delta_s \exp(iqz) \cdot dz + \int_0^D \delta_f(z) \cdot \exp(iqz) \cdot dz \right) = R_s(q) + R_f(q), \quad (4)$$

где $R_s(q)$ – амплитуда рассеяния от подложки; $R_f(q)$ – амплитуда рассеяния от свободной плёнки; $\rho_f(z) = \frac{2\pi}{\lambda^2 r_e} \cdot \delta_f(z)$, $\rho_s = \frac{2\pi}{\lambda^2 r_e} \cdot \delta_s$, r_e – классический радиус электрона.

Интенсивность рассеяния от плёнки на подложке можно разбить на составляющие:

$$I_{yf}(q) = |R_{yf}(q)|^2 = I_s(q) + I_f(q) + R_f(q) \cdot R_s^*(q) + R_s(q) \cdot R_f^*(q), \quad (5)$$

где два последних члена дают вклад в интенсивности рассеяния от пленки и подложки (знаком * обозначены комплексно-сопряженные величины).

Если обозначить действительную и мнимую части амплитуды рассеяния соответственно $A(q)$ и $B(q)$, а затем учесть, что $A_s(q) \equiv 0$ и

$$B_s(q) = -\frac{8\pi^2 \delta_s}{\lambda^2 q^2}, \text{ то:}$$

$$I_{yf}(q) = \frac{64\pi^4 \delta_s^2}{\lambda^4 q^4} + I_f(q) - \frac{16\pi^2 \delta_s}{\lambda^2 q^2} B_f(q). \quad (6)$$

Легко видеть, что для каждого q , имеем уравнение, связывающее измеряемую интенсивность $I_{yf}(q)$ с неизвестными $I_f(q)$ и $B_f(q)$, т.е. если измерения проводить для одинаковых плёнок, нанесённых на две подложки $s1$ и $s2$ с разными электронными плотностями, то можно определить для каждого значения q интенсивность свободной плёнки и мнимую часть амплитуды рассеяния:

$$I_f(q) = \frac{I_{s1f}(q) \cdot \delta_{s2} - I_{s2f}(q) \cdot \delta_{s1}}{\delta_{s2} - \delta_{s1}} + \frac{64\pi^4}{\lambda^4 q^4} \cdot \delta_{s1} \delta_{s2}, \quad (7)$$

$$B_f(q) = \frac{q^2 \lambda^2}{16\pi^2} \cdot \frac{I_{s1f}(q) - I_{s2f}(q)}{\delta_{s2} - \delta_{s1}} + \frac{4\pi^2 \delta_s}{\lambda^2 q^2} \cdot (\delta_{s1} + \delta_{s2}). \quad (8)$$

Для свободной пленки автокорреляционная функция $Q_f(u)$ определяется формулой:

$$Q_f(u) = \int_{\max(0,u)}^{\min(D,D+u)} \rho(z) \cdot \rho(z+u) \cdot dz = \int_0^{+\infty} \rho(z) \cdot \rho(z+u) \cdot dz \quad (9)$$

$Q_f(u)$ – финитная функция, отличная от нуля при $-D \leq u \leq D$, может быть вычислена непосредственно по $I_f(q)$

$$Q_f(u) = \frac{1}{\pi(4\pi)^2} \int_0^{\infty} q^2 I_f(q) \cdot \exp(-iqu) \cdot dq. \quad (10)$$

Следовательно, для свободной пленки средневзвешенная (average weighted) рассеивающая плотность

$$\rho_{av} = \frac{1}{D} \int_0^D \rho(z) dz \quad (11)$$

может быть вычислена по автокорреляционной функции

$$\rho_{av} = \frac{1}{D} \sqrt{\int_0^D Q(u) du}. \quad (12)$$

Следует заметить, что для свободной пленки, как показала практика, задача поиска наилучших значений параметров путем минимизации квадратичного функционала, характеризующего различие между I_{exp} и рассчитываемой модельной интенсивностью I_{mod} , намного перспективнее, чем для пленки на подложке.

Однако, новая модель эксперимента позволяет осуществить прямое восстановление строения пленки по данным измерений. Действительно, найдено I_f и B_f , а, следовательно и модуль действительной части амплитуды $|A_f|$.

3. Расчёт рефлектометрической кривой и восстановление строения плотности

Возможность нахождения из эксперимента кривой значений модуля амплитуды $|A_f(q)|$ позволяет свести задачу получения $A_f(q)$ к проблеме устранения модуля.

Рассмотрим упрощённый вариант модели слоистой плёнки (без учёта поглощения и шероховатости) из n слоёв (в данной работе расчеты приведены для модели рис.1 с количеством слоёв $n = 3$).

Модель трёхслойной пленки:

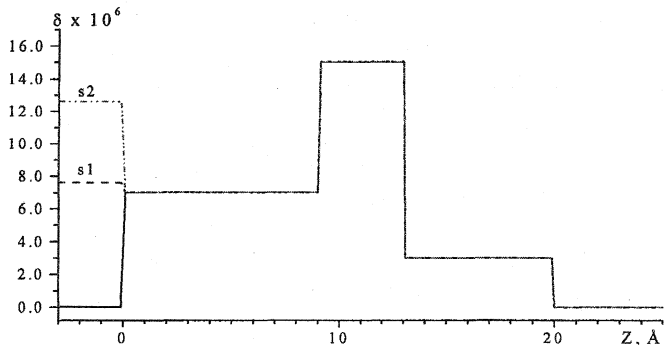


Рис. 1а. Кривые $\delta(z)$, характеризующие поперечный профиль электронной плотности 3-х слойной плёнки без подложки и на подложках $s1$ и $s2$;

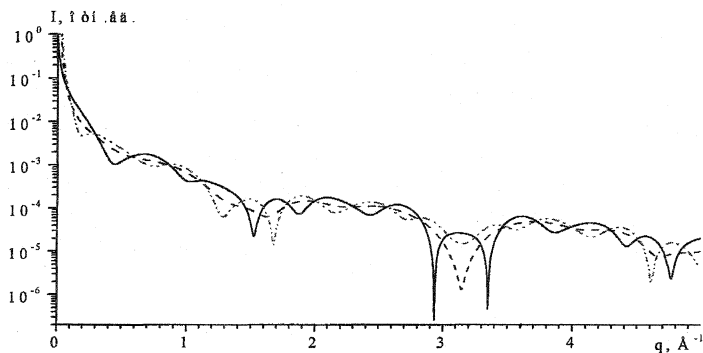


Рис. 1б. Кривые I_f , I_{s1f} и I_{s2f} интенсивностей рассеяния от данной плёнки, соответственно свободно висящей (без подложки) и на подложках $s1$ и $s2$ с различными δ_{s1} и δ_{s2} (каждая кривая интенсивности и соответствующий ей профиль изображены однотипными линиями: сплошной, штриховой и штрих-пунктирной).

Амплитуда рассеяния $R_f(q)$ для такой модели может быть представлена выражением:

$$\begin{aligned}
 R_f(q) &= \frac{8\pi^2}{\lambda^2 q} \int_0^D \delta(z) \cdot e^{iqz} dz = \\
 &= \frac{8\pi^2}{\lambda^2 q} \left\{ \left[\sum_{k=1}^{n-1} (\delta_k - \delta_{k+1}) \sin\left(q \sum_{l=1}^k dl\right) + \delta_n \sin\left(q \sum_{l=1}^n dl\right) \right] + \right. \\
 &\quad \left. + i[\delta_1 - \delta_n \cos\left(q \sum_{l=1}^n dl\right) - \sum_{k=1}^{n-1} (\delta_k - \delta_{k+1}) \cos\left(q \sum_{l=1}^k dl\right)] \right\}, \quad (13)
 \end{aligned}$$

где первое выражение в квадратных скобках соответствует действительной части $A_f(q)$, а второе – мнимой $B_f(q)$.

Видно, что частоты, определяющие строение $A_f(q)$ и $B_f(q)$ одни и те же, а следовательно, для их выявления можно воспользоваться тем, что $B_f(q)$ нам известно. Выделение скрытых периодичностей может быть реализовано одним из методов изложенных в книге [3] или широко распространённым в настоящее время вейвлет анализом [4]. Сведения о структуре $B_f(q)$ используем для расчёта $A_f(q)$ по $|A_f(q)|$. Заметим, что упрощение модели слоистой плёнки не вносит существенных особенностей в процесс пересчёта.

При тестовых расчётах нами применён более простой алгоритм. Как видно из рис. 2 $A_f(q)$ (пунктирная линия) представляет непрерывную, кусочно-монотонную кривую с несущей частотой, определяемой толщиной плёнки. При переходе через "ноль" скорость изменения не меняется. Касания оси абсцисс не было обнаружено. Таким образом, если очередная точка q_k попадает в ε -полосу вдоль оси абсцисс, то следующее значение меняет знак. Если же функция не попадает в ε -полосу при приближении к нулю, то проводится анализ разностей в $k-1$, k и $k+1$ точках для выбора монотонной кривой с лучшим соотношением производных (в сомнительных случаях изучается поведение в аналогичных точках $B_f(q)$). Как правило, отличие $A_f(q)$ от $|A_f(q)|$ состоит в том, что у каждой чётной волны знак следует изменить на отрицательный (рис.2б).

Сравнение результатов прямых вычислений (обозначены точками) и применения разностных формул (7) и (8) для восстановления:

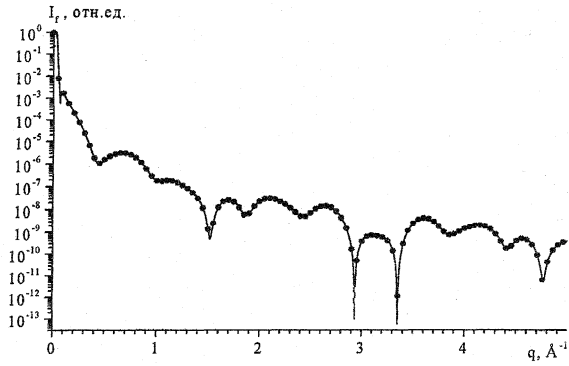


Рис. 2а. $I_f(q)$;

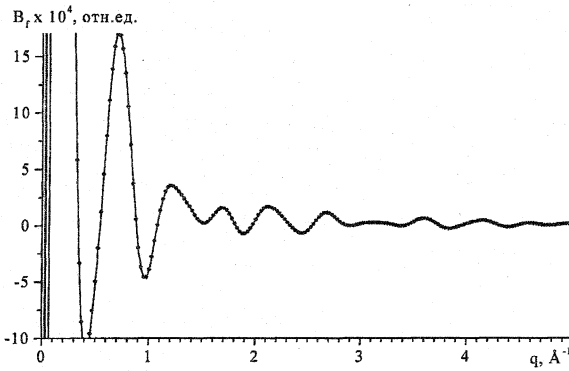


Рис. 2б. $V_f(q)$;

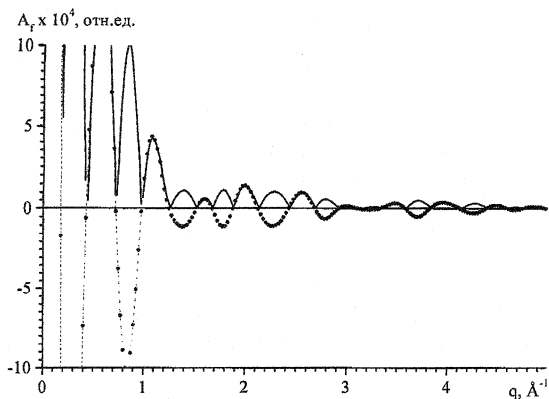


Рис. 2в. $A_f(q)$ и $|A_f(q)|$ для модели трёхслойной плёнки

Определённые сложности возникают из-за наличия на кривой $I(q)$ области полного внешнего отражения. Проблему можно упростить, используя Френелевское приближение [5]. Кроме того, на рис.3а показано, что восстановление профиля плотности при обратном распределении знаков $A_f(q)$ (рис.3б), приводит к абсурдному результату и вышеприведённые критерии (10), (12) не приводят к принятию ложного решения.

Результаты расчётов профиля плотности модели:

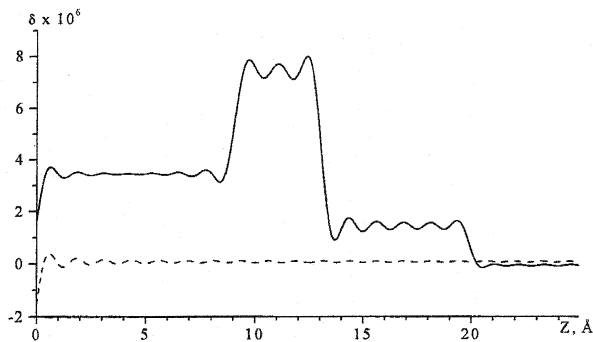


Рис. 3а. Верный (сплошная линия) выбор распределения знаков при восстановлении $A_f(q)$;

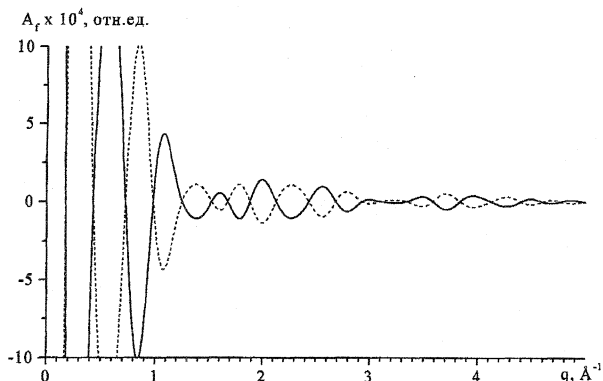


Рис. 3б. Неверный (пунктирная линия) выбор распределения знаков при восстановлении $A_f(q)$

На рис. 4 приведён пример восстановления профиля плёнки путем применения разностных формул (7), (8) и последующего освобождения от модуля в $A_f(q)$. На восстановленной модели плёнки видны волны обрыва, которые можно подкорректировать, если воспользоваться алгоритмами усреднения [6]. Полученное распределение плотности может быть аппроксимировано набором слоёв с параметрами $\{\delta_i, d_i\}$ с завершающим уточнением их по χ^2 -критерию.

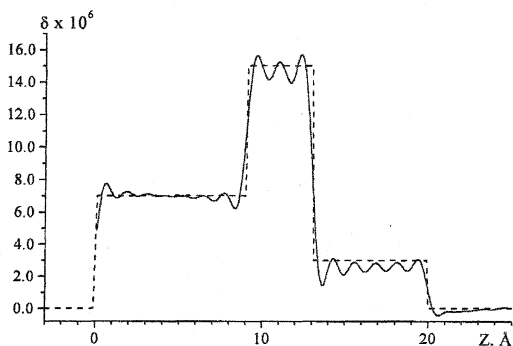


Рис. 4 Сравнение восстановленного разностным методом профиля трёх-слойной плёнки (сплошная линия) и исходной модели (пунктирная линия).

Выводы

Предложенная модель рефлектометрического эксперимента дает возможность восстановить строение многослойной пленки по экспериментальным данным.

Тем самым доказано существование решения соответствующей обратной задачи и предложен численный метод ее решения.

Естественно, необходимо выяснить, как точность восстановления многослойной пленки связана с областью измерений ($q \leq q_{max}$) и шагом измерений (Δq). Очевидно, что, чем больше слоев в ячейке и периодов ее повторяемости, тем больше должно быть q_{max} . Однако, исследование вопроса устойчивости решения – самостоятельная важная работа, которую предполагается провести при апробации метода на конкретных моделях пленок.

Литература

1. G.Parrat. Surface studies of solids by total reflection of X-rays. Physical Review, 1954, v.95, n.2, p.359-369.
2. Гинье А. Рентгенография кристаллов. Теория и практика. М.: Физматгиз. 1961, 604 С.
3. М.Г.Серебренников, А.А. Первозванцев. Выделение скрытых периодичностей. М.: Наука. 1965, 244 С.
4. В.П.Дьяконов. Вейвлеты. От теории к практике. М.: СОЛОН-Р. 2002, 448 С.
5. М.Борн, Э.Вольф. Основы оптики. М.: Наука. 1970, 856 С.
6. Рольбин Ю.А., Свергун Д.И., Фейгин Л.А., Щедрин Б.М. О сглаживании экспериментальных кривых. Кристаллография, 1980, т.25, №2, с.231-239.