

МОДЕЛЬНЫЙ ПОДХОД К РЕШЕНИЮ ОБРАТНОЙ ЗАДАЧИ РЕФЛЕКТОМЕТРИИ И ЕГО ПРИМЕНЕНИЕ ДЛЯ ИССЛЕДОВАНИЯ ВНУТРЕННЕЙ СТРУКТУРЫ ПЛЕНОК ОКСИДА ГАФНИЯ

© 2013 г. Ю. О. Волков, И. В. Кожевников, Б. С. Рошин, Е. О. Филатова*, В. Е. Асадчиков

Институт кристаллографии РАН, Москва

** Институт физики Санкт-Петербургского государственного университета*

E-mail: neko.crys@gmail.com

Поступила в редакцию 26.04.2012 г.

Обсуждаются ключевые особенности восстановления профиля диэлектрической проницаемости по глубине образца из измеренной угловой зависимости коэффициента отражения и анализируются фундаментальные факторы, приводящие к неоднозначности ее решения. Рассмотрен простейший подход для исследования внутренней структуры пленок HfO_2 , основанный на использовании физически разумной модели. Анализируются принципы построения модели пленки и критерии выбора минимально возможного числа подгоночных параметров. Показано, что даже для простейших моделей одиночных пленок неоднозначность рефлектометрии сохраняется. Обсуждаются подходы, позволяющие выбрать из нескольких возможных решений то, которое соответствует реальности.

DOI: 10.7868/S0023476113010190

ВВЕДЕНИЕ

Рентгеновское излучение представляет собой уникальный инструмент для изучения морфологии пленочных и многослойных покрытий. Малая длина волны и возможность плавного изменения глубины проникновения излучения в вещество от нескольких нанометров в области полного внешнего отражения до нескольких микронетров вне ее позволяют проводить количественные исследования структуры образца как по глубине (профиль диэлектрической проницаемости), так и в латеральном направлении (шероховатость) с разрешением в единицы и доли нанометров [1–4].

Однако восстановление профиля диэлектрической проницаемости из экспериментальной кривой отражения (т.е. решение обратной задачи рефлектометрии) в общем случае является неоднозначным, а выбор решения, соответствующего реальности, зачастую оказывается затруднительным. На сегодняшний день существует ряд подходов, позволяющих существенно ограничить неоднозначность решения.

Простейший и наиболее широко используемый подход к решению обратной задачи рефлектометрии заключается в моделировании распределения диэлектрической проницаемости в виде функции, зависящей от набора неизвестных параметров, которые находятся подгонкой рассчитанной кривой отражения к экспериментальной. Такой подход работает лишь в том случае, когда удается построить адекватную модель отражающей среды, т.е. ее внутренняя структура достаточ-

но хорошо известна априори. Тем не менее даже при использовании модели с небольшим числом подгоночных параметров проблема многозначности решения все еще остается.

Если модель исследуемой структуры не известна, то для решения обратной задачи следует использовать модельно-независимый подход. К настоящему моменту разработано несколько безмодельных подходов к восстановлению профиля диэлектрической проницаемости по данным рентгеновской или нейтронной рефлектометрии. Из наиболее общих подходов можно указать метод максимума энтропии и спектральный анализ по Байесу [5], параметризацию профиля диэлектрической проницаемости с использованием кубических В-сплайнов или разложения по синусам/косинусам [6], а также итерационные алгоритмы, основанные либо на линеаризации интегрального уравнения для коэффициента отражения [7], либо на применении регуляризационного подхода по Тихонову [8]. Тем не менее, как отмечалось в [5, 7], ни один из этих подходов не снимает проблему многозначности решения обратной задачи.

В [9] разработан подход, позволяющий, по мнению его авторов, определить все возможные физически обоснованные решения обратной задачи рефлектометрии. В этом подходе, основанном на применении генетического алгоритма совместно с алгоритмом восстановления фазы амплитудного коэффициента отражения, количество возможных решений существенно ограничивается за счет наложения на них ряда общих условий.

Похожим образом подход, разработанный в [10, 11], позволяет выбрать из неограниченного количества возможных решений такие, которые удовлетворяют требуемому (моделируемому) поведению амплитудного коэффициента отражения при больших значениях параметра $q = k \sin \theta$ (где k – волновое число в вакууме, θ – угол скольжения зондирующего пучка). В свою очередь асимптотическое поведение коэффициента отражения может быть предсказано на основе анализа измеренной части кривой отражения. Оказывается, что число подобных решений крайне ограничено и составляет ровно четыре в случае, когда различны толщины всех слоев, образующих структуру, причем два из них приводят к нефизическим для жесткого рентгеновского диапазона значениям диэлектрической проницаемости, превышающим единицу.

Цель настоящей работы – анализ эффективности намного более простого модельного подхода к решению обратной задачи рентгеновской рефлектометрии. Экспериментальными образцами были тонкие пленки оксида гафния, синтезированные на кремниевых подложках. Выбор оксида гафния в качестве исследуемого материала обусловлен его перспективностью как *high-k* диэлектрика в создании сверхмалых комплиментарных МОП-структур для современной электроники [12]. Поскольку параметры наносимых слоев в таких структурах влияют непосредственно на их рабочие характеристики, развитие методов контроля качества тонких пленок *high-k* диэлектриков является весьма актуальным.

В настоящей работе рассмотрены ключевые особенности обратной задачи рентгеновской рефлектометрии и обсуждаются фундаментальные факторы, приводящие к неоднозначности решения. Описан подход для исследования внутренней структуры пленок, основанный на простой физически разумной модели. Обсуждаются принципы построения модели пленки и критерии выбора минимально возможного числа подгоночных параметров. Показано, что для простейших использованных моделей одиночных пленок неоднозначность решения обратной задачи рефлектометрии сохраняется. Обсуждаются подходы, позволяющие выбрать из нескольких возможных решений то, которое соответствует реальности.

КРАТКИЙ ОБЗОР ОБРАТНОЙ ЗАДАЧИ РЕНТГЕНОВСКОЙ РЕФЛЕКТОМЕТРИИ

Рассмотрим волновое уравнение для *s*-поляризованного излучения

$$\frac{d^2 E}{dz^2} + (q^2 - k^2 \chi(z)) E = 0; \quad (1)$$

$$\chi(z) = 1 - \varepsilon(z) \rightarrow \begin{cases} \chi_+ = \text{const} & \text{при } z \rightarrow +\infty \\ 0, & \text{при } z \rightarrow -\infty \end{cases}$$

с граничным условием

$$E(z \rightarrow -\infty) = \exp(iqz) + r(q) \exp(-iqz), \quad (2)$$

где ось Z направлена в глубь подложки, $\varepsilon(z) = 1 - \chi(z)$ – диэлектрическая проницаемость, стремящаяся к постоянным значениям в вакууме и в глубине подложки; $k = \omega/c$ – волновое число в вакууме; $q = k \sin \theta$ – Z -компонента волнового вектора падающей волны; θ – угол скольжения рентгеновского излучения, отсчитываемый от поверхности образца; $r(q)$ – комплексный амплитудный коэффициент отражения, определяющий асимптотику поля при $z \rightarrow -\infty$.

Обратная задача рентгеновской рефлектометрии состоит в восстановлении распределения $\chi(z)$ по глубине (профиля диэлектрической проницаемости) на основании угловой зависимости коэффициента отражения $R(q) = |r(q)|^2$, измеренной в ограниченном диапазоне углов скольжения $\theta \in [\theta_{\min}, \theta_{\max}]$.

Отметим, что обратная задача в применении к одномерному стационарному уравнению Шредингера является одной из классических задач квантовой механики, успешно решенной в работах Гельфанда, Левитана и Марченко [13]. Квантово-механическое уравнение идентично уравнению (1), если рассматривать q^2 как энергию частицы, налетающей на потенциал $V(z) = k^2 \chi(z)$. Теорема Гельфанда–Левитана–Марченко (ГЛМ) гласит: если амплитудный коэффициент отражения $r(q)$ (комплексная величина, характеризующаяся как модулем, так и фазой) от эрмитова (непоглощающего) потенциала известен в неограниченном диапазоне значений $q \in (-\infty, \infty)$, то функция $\chi(z)$ может быть найдена однозначно как решение уравнения ГЛМ.

В то же время классическое доказательство теоремы ГЛМ базируется на предположении, что потенциал быстро спадает до нуля в обеих асимптотических областях $z \rightarrow \pm\infty$, а точнее, что существует интеграл [13]:

$$\int_{-\infty}^{+\infty} |\chi(z)|(1 + |z|) dz < \infty. \quad (3)$$

Очевидно, что в рентгеновской оптике это предположение некорректно, поскольку исследуемая структура обычно расположена на подложке, то функция $\chi(z)$ стремится к постоянной величине при $z \rightarrow +\infty$ и, следовательно, интеграла (3) не существует.

В течение последних лет прилагались значительные усилия к решению обратной задачи для одномерного потенциала, имеющего более общий вид по сравнению с (3), но при наличии некоторой дополнительной информации о его поведении ([14–17] и ссылки в них). В частности, для потенциалов, неизвестных на ограниченном интервале Z -оси, но в предположении, что $\chi(z) = 0$ при $z < z_1$ (вакуум) и $\chi(z) = \text{const}$ при $z > z_2$ (подложка), получены различные доказательства теоремы единственности. Однако в этих случаях аналог уравнения ГЛМ неизвестен и, как следствие, метод прямого извлечения функции $\chi(z)$ из экспериментальных данных пока не установлен.

Более того, все общие теоремы, полученные в одномерной квантово-механической теории рассеяния, справедливы лишь для эрмитовых (непоглощающих) потенциалов. Поглощением даже жесткого рентгеновского излучения можно пренебречь только для достаточно тонких образцов. Например, поглощение рентгеновских лучей с энергией $E = 8$ кэВ не влияет на восстановленный профиль вольфрамовой пленки в случае, если ее толщина не превышает 5–6 нм [10]. Пленка может быть толще при использовании излучения с более высокой энергией и значительно толще – в случае легкого материала пленки. Отметим, что для неэрмитовых (поглощающих) потенциалов никаких существенных результатов не было получено и в квантово-механической обратной задаче рассеяния.

Как классическая теорема ГЛМ, так и современные подходы предполагают измерение комплексного амплитудного коэффициента отражения $r(q)$, а не его абсолютного значения $R(q) = |r(q)|^2$. Хотя в настоящее время развиваются методы определения фазы амплитудного коэффициента отражения [18–21], в подавляющем большинстве рентгеновских экспериментов измеряется его абсолютное значение $R(q) = |r(q)|^2$, в то время как информация о фазе отсутствует.

В отличие от академических задач квантовой механики, где энергия частицы может принимать любое значение $q^2 \in [0, +\infty]$, рентгеновские измерения могут быть проведены в ограниченном интервале значений q , где в любом случае $q_{\text{max}} \leq k = 2\pi/\lambda$. Отметим, что в классической постановке обратной задачи значение q можно изменять только за счет изменения угла падения пучка θ , но не изменения длины волны излучения λ , поскольку в последнем случае потенциал в (1) превращается в функцию от λ .

Для коротковолнового рентгеновского излучения ни одна реальная поверхность не может рассматриваться как идеально гладкая. Шероховатости поверхности и границ раздела рассеивают часть падающего излучения, изменяя при этом форму кривой отражения. В результате восста-

новленный профиль диэлектрической проницаемости может оказаться существенно искаженным, прежде всего, из-за кажущегося сглаживания границ раздела между соседними слоями [10, 22]. В то же время для микроэлектроники и оптических технологий именно анализ тонкой структуры границ раздела представляет наибольший интерес.

Наконец, коэффициент отражения всегда измеряется с некоторой экспериментальной ошибкой.

Каждый из перечисленных факторов приводит к невозможности однозначного восстановления функции $\chi(z)$ из измеренных данных, т.е. существует множество различных распределений $\chi(z)$, приводящих к одной и той же кривой отражения $R(\theta) \pm \delta R(\theta)$, измеренной в ограниченном интервале углов скольжения $\theta \in [\theta_{\text{min}}, \theta_{\text{max}}]$. Примеры, демонстрирующие неоднозначность решения обратной задачи рентгеновской рефлектометрии, обсуждались в [5–7, 10], где было указано, что любая дополнительная информация об образце чрезвычайно важна: даже примерное знание толщины образца или понимание, в какой области образца (например, вблизи поверхности или вблизи подложки) плотность материала выше, может помочь в корректном восстановлении профиля диэлектрической проницаемости.

РЕКОНСТРУКЦИЯ ПРОФИЛЯ ДИЭЛЕКТРИЧЕСКОЙ ПРОНИЦАЕМОСТИ НА ОСНОВЕ ПРОСТОЙ МОДЕЛИ

Основное преимущество модельного подхода состоит в том, что он всегда может осуществить корректное восстановление профиля диэлектрической проницаемости, если удастся построить адекватную модель образца. Для иллюстрации возможностей подхода и возникающих при его использовании проблем проанализируем результаты исследований пленок HfO_2 толщиной около 5 и 17 нм, нанесенных на кремниевую подложку методом атомного наслаивания (ALD – *Atomic Layer Deposition*). Угловые зависимости коэффициента отражения (рис. 1) были измерены при энергии рентгеновских фотонов $E = 8052$ эВ (характеристическая K_α -линия меди) на лабораторном дифрактометре [23]. Угловая апертура щели детектора равнялась 0.19° , ширина зондирующего пучка составляла $d \approx 95$ мкм, расходимость пучка не превышала 0.01° , а немонахроматичность излучения $\delta\lambda/\lambda \approx 8.36 \times 10^{-4}$. Экспериментальная погрешность измерения коэффициента отражения не превышала $\Delta R_{\text{exp}}/R_{\text{exp}} \leq 0.1$ как по теоретическим оценкам, так и по данным калибровки дифрактометра на стандартных образцах [23]. Основной вклад в экспериментальную погрешность вносит расходимость падающего пуч-

ка, приводящая к усреднению регистрируемой интенсивности отражения по соответствующему диапазону углов; в то время как вклад немонохроматичности излучения не превосходит статистической ошибки измерений. Таким образом, приведенное выше значение экспериментальной погрешности можно полагать корректным в случае, когда период характерных особенностей на измеренной кривой отражения (в частности, осцилляций Киссига) значительно (на порядок и более) превосходит расходимость падающего пучка.

Для построения адекватной модели исследуемого образца использовался подход, основанный на известном философском принципе “бритвы Оккама”, гласящем “не умножай сущностей сверх необходимого”. Иными словами, если физическое явление можно описать с одинаковой точностью несколькими разными моделями, то следует предпочесть простейшую из них. Подход основан на переборе серии физически разумных моделей с постепенно возрастающей сложностью, пока точность подгонки под экспериментальные данные не окажется в пределах погрешности измерений [5]. Схожий подход, основанный на поэтапном уточнении модели со статистическим анализом значимости параметров, описан в [24, 25].

Для рассматриваемого образца простейшей из возможных является модель одиночной однородной пленки HfO_2 , расположенной на однородной подложке Si . Естественными параметрами подгонки являются плотность и толщина пленки. Плотность монокристаллической кремниевой подложки (2.42 г/см^3) предполагается известной. Значения диэлектрических постоянных веществ рассчитывались на основе атомных факторов рассеяния, зависимости которых от энергии рентгеновского излучения протабулированы для всех химических элементов в [26].

При решении обратной задачи рефлектометрии необходимо учесть влияние шероховатостей на кривую отражения. Наиболее последовательный самосогласованный подход, разработанный в [11], подразумевает одновременное определение как профиля диэлектрической проницаемости, так и трех PSD-функций, описывающих статистические свойства шероховатостей обеих границ раздела тонкой пленки и их статистическую взаимосвязь и представляющих собой фурье-преобразования от соответствующих корреляционных функций. Однако этот подход подразумевает измерения не только кривой отражения, но и угловых распределений рассеяния при различных углах падения зондирующего пучка, что не было проделано в описываемых ниже экспериментах.

Шероховатость пленки можно разделить на две компоненты [27–29]. Первая из них – длиннопериодная шероховатость, повторяющая рельеф подложки; вторая – короткопериодная, воз-

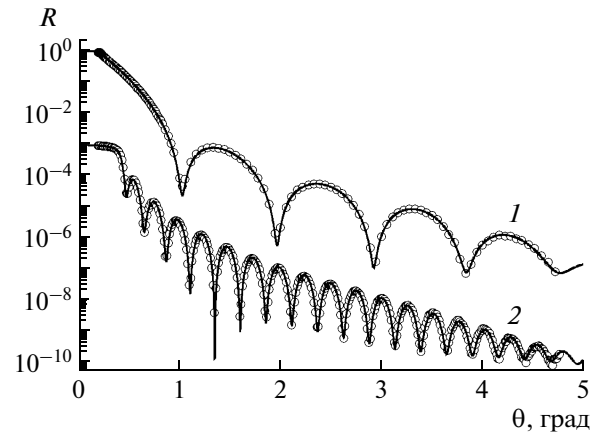


Рис. 1. Экспериментальные угловые зависимости коэффициента отражения при энергии фотонов $E = 8052 \text{ эВ}$ (кружки) от пленок HfO_2 толщиной 5 (1) и 17 нм (2). Сплошные кривые – результат подгонки в рамках трехслойной модели $\text{C/HfO}_2/\text{SiO}_2/\text{Si}$ с использованием алгоритма глобальной оптимизации; кривая 2 – сдвиг по вертикальной оси на фактор 10^3 .

никающая из-за случайного характера процесса напыления пленки и не коррелирующая с шероховатостью подложки. В случае конформных (повторяющихся) шероховатостей с достаточно большой корреляционной длиной в плоскости границы раздела угловые зависимости коэффициентов отражения и интегрального рассеяния в вакуум (TIS) описываются фактором Дебая-Валлера

$$R(\theta) = R_0(\theta) \left[1 - \left(\frac{4\pi\sigma}{\lambda} \sin \theta \right)^2 \right], \quad (4)$$

$$TIS(\theta) = R_0(\theta) \left(\frac{4\pi\sigma}{\lambda} \sin \theta \right)^2,$$

где R_0 – коэффициент отражения от идеально гладкой структуры. Оказывается, что формулы (4) справедливы для любой слоистой среды (одиночной поверхности, пленки на подложке, периодической либо непериодической структуры) с резкими или гладкими границами раздела и любого статистического распределения высот шероховатостей. Вывод, подробное обсуждение и анализ применимости (4) приведены в [22]. Важная особенность (4) заключается в том, что интегральный коэффициент отражения $R_{\Sigma}(\theta) = R(\theta) + TIS(\theta)$, характеризующий полную интенсивность излучения, отраженного от шероховатого образца в вакуум (сумма зеркально отраженной и рассеянной компонент), очень близок по значению к коэффициенту отражения от идеально гладкого образца. Таким образом, если входная апертура детектора достаточно широкая, чтобы собрать все рассеянное излучение, то длиннопериодные конформные шероховатости не изменяют регистрируемый сигнал

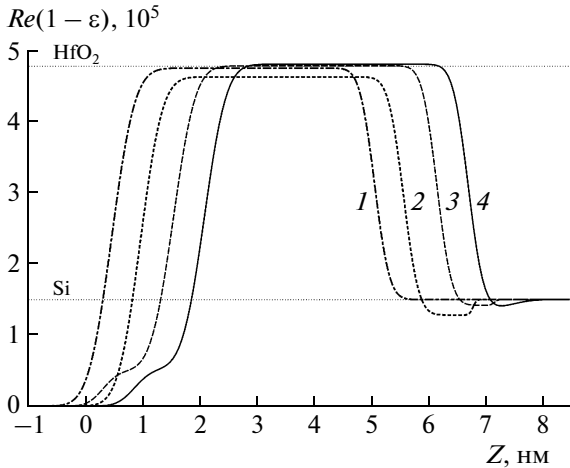


Рис. 2. Профили диэлектрической проницаемости (при энергии фотонов $E = 8052$ эВ), восстановленные с использованием алгоритма BFGS на основе простых моделей HfO_2/Si (1), $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2/\text{Si}$ (2), $\text{Si}/\text{HfO}_2/\text{SiO}_2/\text{Si}$ (3) и с использованием метода имитации отжига на основе трехслойной модели $\text{Si}/\text{HfO}_2/\text{SiO}_2/\text{Si}$ (4). Для ясности профили сдвинуты относительно друг друга вдоль горизонтальной оси. Пунктирные прямые показывают диэлектрические постоянные массивного HfO_2 (плотность $9,68 \text{ г/см}^3$) и кристаллического Si (плотность $2,42 \text{ г/см}^3$).

[22] и лишь короткопериодные шероховатости, не коррелированные, как правило, с шероховатостями подложки, влияют на результат измерений.

Влияние на коэффициент отражения короткопериодных некоррелированных шероховатостей с нормальным распределением высот можно описать двумя эквивалентными путями: во-первых, введением поправки Нево–Кроса [30] к амплитудному коэффициенту отражения от каждой из границ раздела и, во-вторых, введением плавного изменения диэлектрической проницаемости на каждой из границ раздела в соответствии с

$$\varepsilon(z) = \frac{\varepsilon_A + \varepsilon_B}{2} - \frac{\varepsilon_A - \varepsilon_B}{2} \operatorname{erf}\left[\frac{z}{\sigma\sqrt{2}}\right], \quad (5)$$

где ε_A и ε_B – диэлектрические проницаемости соседних слоев A и B , а $\operatorname{erf}(x)$ – функция ошибок. Если угловое распределение рассеянного на шероховатостях излучения не измеряется и не анализируется в эксперименте, то оказывается невозможным отличить влияние короткопериодной шероховатости на коэффициент отражения от влияния реального переходного слоя между соседними материалами, возникающего вследствие взаимной диффузии, имплантации и химических реакций. Таким образом, найденные ниже значения σ , рассматриваемые в качестве дополнительных параметров подгонки, характеризуют суммарный эффект как короткопериодной шероховатости, так и реального переходного слоя.

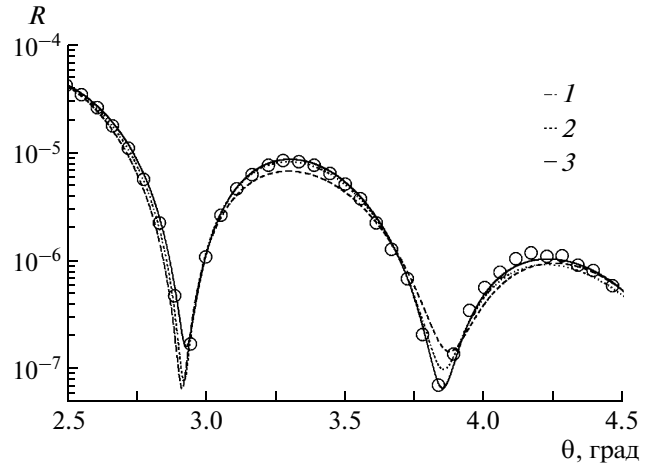


Рис. 3. Демонстрация точности подгонки к экспериментальной кривой отражения (при $E = 8052$ эВ) от пленки HfO_2 толщиной 5 нм (кружки) с использованием простых моделей HfO_2/Si (1), $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2/\text{Si}$ (2) и $\text{Si}/\text{HfO}_2/\text{SiO}_2/\text{Si}$ (3).

При подгонке к экспериментальным данным использовалась функция невязки простейшего вида

$$(\text{MF})^2 = \frac{1}{N} \sum_{j=1}^N \left[\frac{R_{\text{exp}}(\theta_j) - R_{\text{calc}}(\theta_j)}{R_{\text{exp}}(\theta_j)} \right]^2, \quad (6)$$

где значение MF характеризует среднеквадратичное отклонение рассчитанной кривой отражения R_{calc} от экспериментальной R_{exp} , а полное число точек измерений в проведенных экспериментах составляло $N = 125$ с шагом 0.0028° для пленки толщиной 5 нм и $N = 340$ с шагом 0.0014° для пленки толщиной 17 нм. Число подгоночных параметров в простейшей модели одиночной пленки HfO_2/Si равнялось четырем (плотность и толщина пленки, а также “эффективная” ширина границ раздела пленка–вакуум и пленка–подложка). Профиль диэлектрической проницаемости, построенный согласно (5), показан кривой 1 на рис. 2 для пленки толщиной 5 нм, а точность подгонки к экспериментальной кривой отражения иллюстрируется кривой 1 на рис. 3. Среднеквадратичное отклонение расчетной кривой отражения от измеренной составило $\text{MF} = 0.23$, что существенно превышает экспериментальную погрешность в 0.1. Таким образом, однослойная модель недостаточно точно описывает изучаемую структуру и требует усложнения.

На следующем шаге в модели был учтен слой естественного окисла на поверхности кремниевой подложки. Для двухслойной модели $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2/\text{Si}$ точность описания несколько улучшилась, хотя ошибка подгонки составила $\text{MF} = 0.18$, что по-прежнему превышало экспериментальную погрешность. Профиль диэлектрической проницаемости

и точность подгонки иллюстрируются кривыми 2 на рис. 2 и 3 соответственно.

Наконец, в модель был добавлен адгезионный слой, возникающий на любой поверхности и состоящий в основном из молекул углеводородов и воды. Для определенности предположили, что адгезионный слой состоит из атомов углерода. В случае трехслойной модели $C/HfO_2/SiO_2/Si$ среднее отклонение расчетной кривой отражения (рис. 3, кривая 3) от эксперимента составляет $MF = 0.07$, что укладывается в погрешность измерений. Таким образом, изучаемый образец пленки HfO_2 можно корректно описать трехслойной моделью $C/HfO_2/SiO_2/Si$ (рис. 2, кривая 3) с 10 подгоночными параметрами, в качестве которых выступают толщины и плотности слоев C , HfO_2 и SiO_2 , а также “эффективные” ширины интерслоев на всех четырех границах раздела.

О МНОГОЗНАЧНОСТИ РЕШЕНИЯ ОБРАТНОЙ ЗАДАЧИ РЕФЛЕКТОМЕТРИИ

Основная проблема рассматриваемого подхода состоит в том, что в силу чрезвычайной простоты функции невязки (6) возникает огромный набор локальных минимумов, что вполне типично для задач нелинейной оптимизации. Стартуя с разных начальных значений подгоночных параметров и используя алгоритм Бройдена–Флетчера–Гольдфарба–Шанно (BFGS), модифицированный для быстрой численной оптимизации параметрических моделей [31], нашли около 200 локальных минимумов функции невязки для каждой из пленок HfO_2 . Глубина этих минимумов совершенно разная, а значение функции невязки в них составляет $MF = 0.07–2.15$. Ясно, что большая часть этих минимумов, значение функции невязки в которых значительно превышает экспериментальную ошибку (~ 0.1), может быть сразу отброшена. Тем не менее проблема однозначного выбора решения полностью не исчезает.

Неоднозначность решения иллюстрируется рис. 4, где показаны значения найденных локальных минимумов функции невязки для пленки толщиной 5 нм в зависимости от всех 10 подгоночных параметров. Показаны только те минимумы, значения функции невязки в которых не превышают $MF = 0.2$. Видно, что в пределы экспериментальной погрешности попадают три возможных решения, причем все они приводят к физически разумным значениям параметров. Так, плотности слоев HfO_2 и SiO_2 близки к табличным плотностям массивных материалов. Исключение составляет толщина окисного слоя SiO_2 , которая выглядит вполне разумной (~ 1.5 нм) для решения 1 и кажется слишком большой ($\sim 5.5–6$ нм) для двух остальных решений. Следует отметить, что значения параметров пленки HfO_2 (плот-

ность, толщина и “эффективная” шероховатость) практически совпадают во всех представленных на рисунке минимумах, в то время как для слоев C и SiO_2 разброс в значениях параметров существенно больше. В частности, существуют решения с относительно небольшим значением функции невязки в минимуме ($MF < 0.15$), приводящие к физически бессмысленному значению толщины естественного окисла SiO_2 в 16–18 нм. Это связано, во-первых, с тем, что на рабочей длине волны поляризуемости Si и SiO_2 различаются лишь на единицы процентов и, во-вторых, с тем, что форма кривой отражения в наибольшей степени определяется существенно более толстым и тяжелым слоем HfO_2 , в то время как очень тонкие и легкие слои C и SiO_2 приводят лишь к появлению слабых особенностей на кривой отражения, зачастую сопоставимых по величине с ошибкой измерений.

В качестве правильного решения следует выбрать то, которое соответствует наименьшему из найденных минимумов функции невязки (решение 1 на рис. 4). Такой выбор, по-видимому, правилен, поскольку только решение 1 приводит к физически разумному значению толщины окисного слоя SiO_2 . В общем случае при выборе решения следует соблюдать осторожность, поскольку иногда оказывается, что глобальный минимум соответствует физически бессмысленному решению. Подобный пример обсуждается в [27] применительно к исследованию шероховатости растущей пленки Al_2O_3 . Более правильный подход к однозначному выбору решения из нескольких возможных состоит в том, чтобы сопоставить найденные локальные минимумы для несколько различающихся образцов. Следует ожидать, что значения параметров, общих для обеих пленок, должны при этом совпасть.

Отметим, что один из вариантов указанного подхода, а именно сопоставление кривых отражения от одинаковых структур, нанесенных на подложки из различных материалов (так называемый разностный метод), позволяет не только выбрать корректное решение обратной задачи [32], но в ряде случаев и восстановить фазу амплитудного коэффициента отражения [18, 19]. Однако его практическое применение ограничено тем обстоятельством, что рост одной и той же пленки на различных подложках не всегда протекает единообразно. Поэтому рассматривались пленки HfO_2 , нанесенные на одинаковые подложки одинаковым методом, но разной толщины.

На рис. 4 показаны значения найденных локальных минимумов функции невязки для пленки толщиной 17 нм в зависимости от подгоночных параметров. Следует отметить, что для этой пленки лишь один из найденных локальных минимумов (решение 2 на рис. 4) расположен ниже

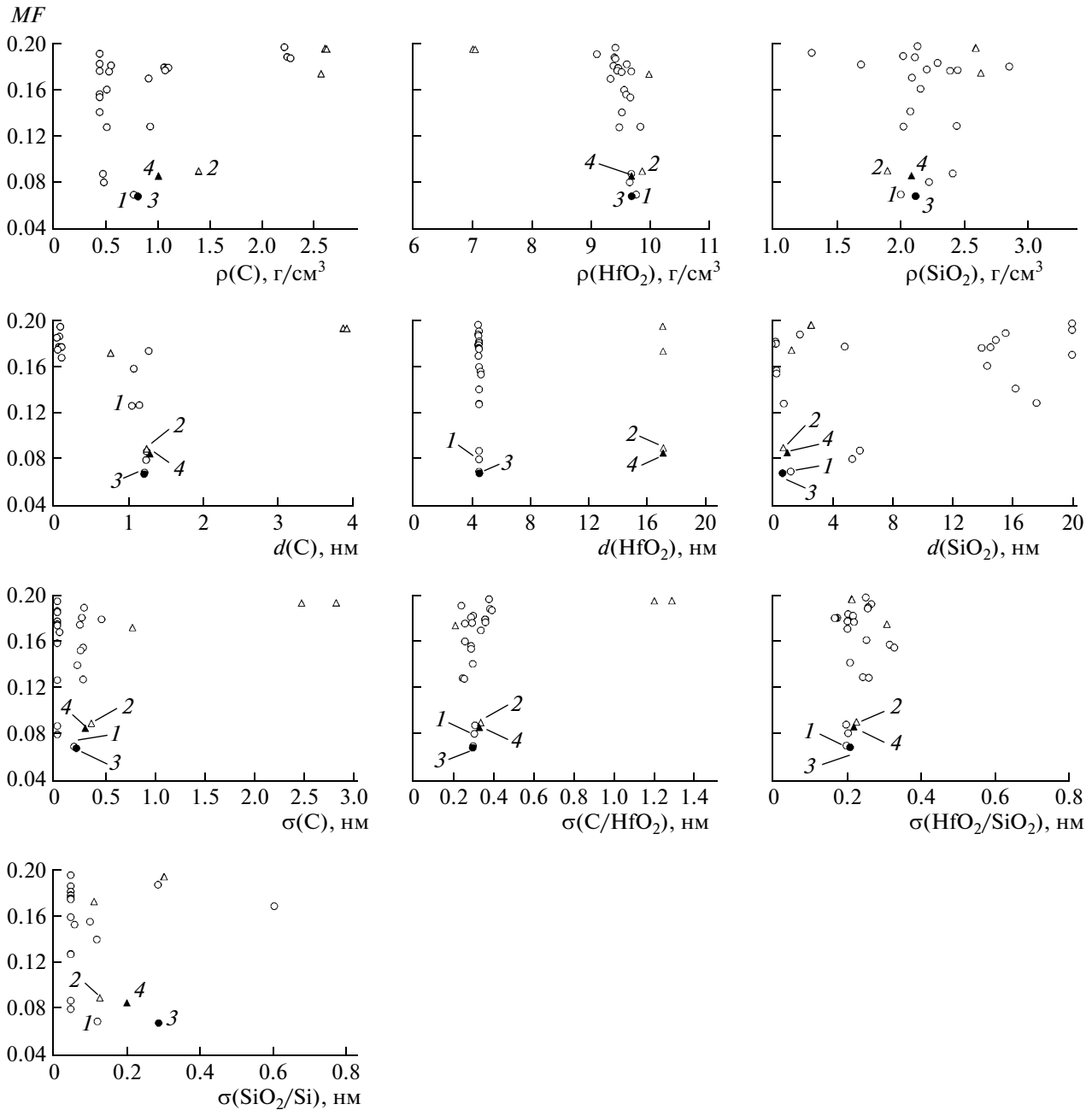


Рис. 4. Значения функции невязки в минимумах в зависимости от 10 подгоночных параметров для пленок толщиной 5 нм (незакрашенные кружки) и 17 нм (незакрашенные треугольники). Значение $\sigma(A/B)$ определяет эффективную ширину границы раздела между соседними слоями A и B . Минимумы 1 и 2 – наилучшие решения, найденные методом BFGS, а минимумы 3 и 4 (закрашенные символы) – решения, найденные методом имитации отжига.

уровня экспериментальной ошибки, что существенно облегчает последующий анализ. Сравнение решений 1 (пленка толщиной 5 нм) и 2 (пленка толщиной 17 нм) наглядно демонстрирует, что значения большинства параметров исследованных образцов для них практически совпадают. Исключением является плотность адгезионного слоя, что, вероятно, связано с его слабым влиянием на кривую отражения от толстой (17 нм) плен-

ки HfO_2 . Поэтому естественно предположить, что именно решение 1 для пленки HfO_2 толщиной 5 нм соответствует реальности и именно оно обсуждалось выше при выборе модели.

Наличие огромного числа локальных минимумов функции невязки позволяет ожидать, что для решения обратной задачи рефлектометрии в рамках модельного подхода окажутся действенными методы глобальной оптимизации [33]. Используя

алгоритм адаптивной имитации сверхбыстрого отжига [34], нашли глобальные минимумы функции невязки для пленок HfO_2 толщиной 5 нм (решение 3 на рис. 4) и 17 нм (решение 4). Видно, что решения 1 и 2 практически совпадают с решениями 3 и 4 соответственно, хотя наблюдается некоторое различие в толщине адгезионного слоя (для решений 2 и 4) и в значении “эффективной” толщины переходного слоя на границе раздела $\text{SiO}_2\text{—Si}$ (для решений 1 и 3). Возможно, наблюдаемые различия связаны с точностью численного определения положения минимумов. Эта точность может быть не слишком высокой, если слабая зависимость функции невязки от упомянутых выше параметров приводит к очень широким минимумам, по крайней мере, вдоль некоторых направлений в пространстве 10 переменных. Следует подчеркнуть, что непосредственный физический смысл имеет профиль диэлектрической проницаемости, который полностью определяет кривую отражения, а не значения подгоночных параметров сами по себе. Сопоставление профилей диэлектрической проницаемости для пленки HfO_2 толщиной 5 нм, соответствующих самому глубокому из найденных локальных минимумов (рис. 2, кривая 3) и глобальному минимуму (рис. 2, кривая 4), показывает, что различия между найденными решениями сводятся к несущественным деталям тонкой структуры окисного и адгезионного слоев. Тем самым оба численных метода привели практически к одному и тому же решению обратной задачи. Существенное преимущество алгоритма глобальной оптимизации перед методами локального поиска заключается в его независимости от выбранного начального приближения подгоночных параметров.

Точность итоговой подгонки экспериментальных кривых отражения для обеих пленок HfO_2 с использованием алгоритма имитации отжига иллюстрируется рис. 1; профили диэлектрической проницаемости, построенные согласно (5), приведены на рис. 5. Как видим, простейшая трехслойная модель позволяет описать экспериментальные кривые отражения с очень высокой точностью. Восстановленные профили диэлектрической проницаемости для обеих пленок полностью соответствуют друг другу, включая тонкую структуру адгезионных и окисных слоев. Полученные профили выглядят вполне реалистично и, в частности, плотность пленки HfO_2 (9.69 г/см^3) соответствует плотности массивного оксида гафния. Найденная среднеквадратичная высота шероховатости подложки (0.22–0.23 нм) и внешней поверхности пленки (0.30 нм для тонкой и 0.34 нм для толстой пленки) хорошо согласуется с данными атомно-силовой микроскопии, полученными для этих образцов. Значение σ для границы раздела SiO_2/Si вероятнее всего соответствует плавному

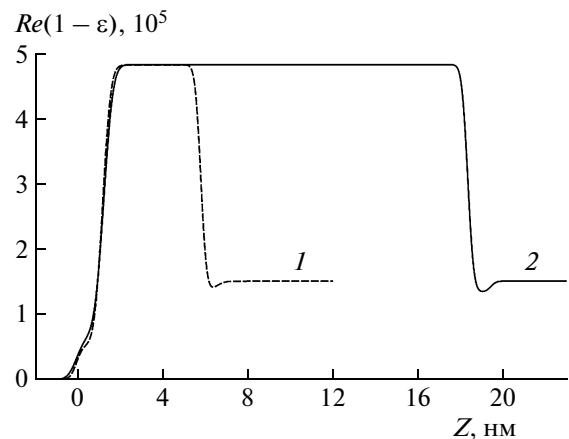


Рис. 5. Профили диэлектрической проницаемости (при энергии фотонов $E = 8052 \text{ эВ}$) пленок HfO_2 толщиной 5 (1) и 17 нм (2), восстановленные с использованием трехслойной модели; 1 идентична 4 на рис. 2.

изменению концентрации кислорода по глубине подложки, а не шероховатости границы раздела. Адгезионный слой углерода на поверхности образца тонкий (около 1.3 нм) и рыхлый (максимальная плотность не превосходит 1 г/см^3).

ВЫВОДЫ

Проведенный анализ показал, что для исследования внутренней структуры пленок высокого качества применим простейший подход, основанный на физически разумной модели. В то же время при использовании простой модели с небольшим числом подгоночных параметров сохраняется проблема неоднозначности решения. Были рассмотрены несколько возможных путей преодоления этой проблемы. Во-первых, следует отбросить те решения, для которых значение функции невязки в минимуме существенно превосходит относительную ошибку измерений коэффициента отражения (порядка 0.1 в нашем случае). Во-вторых, следует отбросить те решения, которые хотя и обеспечивают достаточно малое значение функции невязки, но приводят к заведомо абсурдным значениям подгоночных параметров. Примером могут служить найденные решения, для которых значение функции невязки сравнимо с экспериментальной ошибкой и составляет около 0.15, но толщина естественного окисла на поверхности кремниевой подложки (~16–18 нм) оказывается неприемлемо большой с физической точки зрения. Наконец, наиболее разумный подход к однозначному выбору решения состоит в одновременном анализе кривых отражения от нескольких образцов, слегка различающихся по своим параметрам. В случае, когда рассматриваются пленки различной толщины, синтезированные на идентичных кремниевых подложках, решением, соответствующим

реальности, является то, которое приводит к одной и той же структуре границы раздела между пленкой и подложкой (толщина и плотность окисного слоя, шероховатость поверхности подложки) и одинаковой плотности пленки.

Применение методов глобальной оптимизации существенно ускоряет процесс анализа экспериментальных данных, но здесь следует соблюдать осторожность, поскольку не всегда глобальный минимум функции невязки соответствует физически разумному решению. Пример можно найти в [27]. Обоснованием правильности найденного решения, как и выше, может служить совпадение значений параметров, общих для слегка различающихся образцов.

Тем не менее не всегда удается построить адекватную модель образца, позволяющую достаточно точно описать экспериментальную кривую отражения. Пример приведен в [35], где описаны исследования пленки оксида алюминия, нанесенной методом атомного наслаивания, плотность которой, как оказалось, значительно изменяется по глубине. В этом случае следует использовать безмодельные подходы, которые либо позволят полностью описать экспериментальные данные и восстановить профиль диэлектрической проницаемости, либо, по крайней мере, дадут дополнительную информацию для выбора адекватной модели.

Работа была частично поддержана МНТЦ (проект № 3963).

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Tolan M.* X-Ray Scattering from Soft-Matter Thin Films. Materials Science and Basic Research. Springer Tracts in Modern Physics. Berlin: Springer, V. 148. 1999.
2. *Pietsch U., Holy V., Baumbach T.* High Resolution X-Ray Scattering: From Thin Films to Lateral Nanostructures.. New York: Springer Verlag, 2004.
3. *Асадчиков В.Е., Кожевников И.В., Кривоносов Ю.С.* // Кристаллография. 2003. Т. 48. № 5. С. 897.
4. *Asadchikov V.E., Kozhevnikov I.V., Krivonosov Yu.S. et al.* // Nucl. Instrum. Methods. A. 2004. V. 530. P. 575.
5. *Sivia D.S., Hamilton W.A., Smith G.S.* // Physica. B. 1991. V. 173. P. 21.
6. *Pedersen J.S., Hamley I.W.* // J. Appl. Cryst. 1994. V. 27. P. 36.
7. *Sammar A., André J.-M.* // J. Mod. Opt. 1996. V. 43. P. 67
8. *Hohage T., Giewekemeyer K., Salditt T.* // Phys. Rev. E. 2008. V. 77. P. 051604.
9. *Bengu E., Salud M., Marks L.D.* // Phys. Rev. B. 2001. V. 63. P. 195414.
10. *Kozhevnikov I.V.* // Nucl. Instrum. Methods. A 2003. V. 508. P. 519.
11. *Kozhevnikov I.V., Peverini L., Ziegler E.* // Phys. Rev. B. 2012. V. 85. P. 125439.
12. *Robertson J.* // Eur. Phys. J. Appl. Phys. 2004. V. 28. P. 265.
13. *Левитан Б.М.* Обратные задачи Штурма–Лиувилля. М.: Наука, 1984. 240 с.
14. *Gesztesg F., Simon B.* // Trans. Am. Mather. Soc. 1999. V. 352. P. 2765.
15. *del Rio R., Gesztesg F., Simon B.* // Int. Mather. Res. Notices. 1997. V. 15. P. 751.
16. *Horvath M.* // Annals Mather. 2005. V. 162. P. 885.
17. *Horvath M.* // Trans. Am. Mather. Soc. 2001. V. 353. P. 4155.
18. *Majkrzak C.F., Berk N.F.* // Phys. Rev. B. 1995. V. 52. P. 10827.
19. *Majkrzak C.F., Berk N.F.* // Phys. Rev. B. 1998. V. 58. P. 15416.
20. *Kozhevnikov I.V., Peverini L., Ziegler E.* // Opt. Express. 2008. V. 14. P. 144.
21. *Kozhevnikov I.V., Peverini L., Ziegler E.* // J. Appl. Phys. 2008. V. 104. P. 054914.
22. *Кожевников И.В.* // Кристаллография. 2012. Т. 57. № 4. С. 417.
23. *Асадчиков В.Е., Бабак В.Г., Бузмаков А.В. и др.* // ПТЭ. 2005. № 3. С. 99.
24. *Самойленко И.И., Фейгин Л.А., Шедрин Б.М., Янусова Л.Г.* // Поверхность. 2000. № 9. С. 17.
25. *Янусова Л.Г., Борисова С.Ф., Волков В.В. и др.* // Кристаллография. 2003. Т. 48. № 5. С. 921.
26. http://henke.lbl.gov/optical_constants
27. *Filatova E.O., Peverini L., Ziegler E. et al.* // J. Phys. Condens. Matter. 2010. V. 22. P. 345003.
28. *Peverini L., Ziegler E., Bigault T., Kozhevnikov I.V.* // Phys. Rev. B. 2005. V. 72. P. 045445.
29. *Peverini L., Ziegler E., Bigault T., Kozhevnikov I.V.* // Phys. Rev. B. 2007. V. 76. P. 045411.
30. *Nevot L., Croce P.* // Rev. Phys. Appl. 1980. V. 15. P. 761.
31. *Byrd R.H., Lu P., Nocedal J.* // SIAM J. Sci. Stat. Comp. 1995. V. 16. P. 1190.
32. *Астафьев С.Б., Борисова С.Ф., Шедрин Б.М., Янусова Л.Г.* // Кристаллография. 2006. Т. 51. № 4. С. 727.
33. *Samoilenko I.I., Feigin L.A., Shchedrin B.M.* // Physica. B. 1996. V. 221. P. 542.
34. *Ingber L.* // Math. Comput. Model. 1989. V. 12. P. 967.
35. *Filatova E.O., Sokolov A.A., Kozhevnikov I.V.* // High-k Gate Dielectrics for CMOS Technologies / Eds. He, Sun. Weinheim; Germany: Wiley-VCH Verlag, 2012. Ch. 7. P. 225.