

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

## **МАТЕМАТИЧЕСКИЙ АППАРАТ И ПРОГРАММНЫЙ КОМПЛЕКС VARD ДЛЯ РЕШЕНИЯ ЗАДАЧ РЕФЛЕКТОМЕТРИИ ТОНКИХ ПЛЕНОК**

### **Введение**

Одним из основных методов изучения поперечного профиля электронной плотности многослойных плёнок является метод рентгеновской рефлектометрии, основанный на измерении отражательной способности рентгеновских лучей поверхностью материала вблизи критического угла полного внешнего отражения (ПВО). Процесс развития методов решения задач рефлектометрии до сих пор не теряет актуальности, особенно при изучении процессов формирования слоистых структур, поскольку регистрируемая в эксперименте интенсивность отражения излучения от поверхности материала при малых углах скольжения сильно зависит от состава и распределения плотности многослойных пленок, структурных особенностей переходных слоев и межслойных границ. Получение параметров структуры образца по данным рассеяния излучения представляет собой обратную задачу рентгеновских методов. При решении обратной задачи, как правило, проводится вычисление интенсивности рассеяния от гипотетической модели и последующая коррекция описывающих ее параметров с использованием итерационных методов последовательных приближений при минимизации функционала  $\chi^2$ .

При вычислении рефлектометрической кривой для модели достаточно тонкой пленки можно пренебречь эффектами многократного переотражения падающего и дифрагированного излучения, а также эффектами поглощения и преломления и ограничиться кинематическим приближением.

Иная ситуация реализуется в случае достаточно толстой многослойной структуры из  $N$  слоев с периодом  $d$ , когда общая толщина пленки  $L = N \cdot d > 1 \mu m$ . Здесь существенную роль начинают играть многократные переотражения волн, учитываемые динамической теорией рассеяния.

Динамический подход, реализуемый в методе Паррата [1], дает решение прямой задачи для выбранной модели. А кинематическое приближение, использующее известные преобразования Фурье, позволяет (хотя и со многими ограничениями) аналитически описать и исследовать

структурные особенности возможных моделей, сокращая варианты поиска при решении обратной задачи.

Кроме этого, при решении обратной задачи важное значение имеют особенности итерационных методов поиска решения: выбор способа оптимизации и построение минимизационного функционала. Желательно также, чтобы при поиске модели было нивелировано влияние случайных (шумы) и систематических (аппаратурные погрешности) искажений данных, всегда присутствующих в эксперименте.

Продолжаются поиски новых математических методов, способных ускорить процесс получения решения с достаточной точностью. Совершенствование методов идет по таким основным направлениям, как поиск наилучших методов локальной или глобальной минимизации, отвечающих конкретной физической задаче, изучение особенностей параметризации модели, интерпретируемости рефлектометрических данных и возможностей поэтапного уточнения модели, разработка новых подходов к учету влияния переходных слоев (шероховатостей) и объёмных неоднородностей [2, 3].

Нами была поставлена задача развития ряда существующих и создания новых оригинальных методов анализа структурных особенностей пленок, и последующая адаптация их для использования в специально разрабатываемом программном комплексе BARD [4].

## Основные понятия

В кинематическом приближении интенсивность  $I$  зеркального отражения рентгеновского излучения от поверхности тонкой плёнки  $I(q) = \Re(q)\Re^*(q)$ , измеряемая в рефлектометрии – есть квадрат модуля амплитуды рассеяния:

$$\Re(q) = \frac{4\pi r_e}{q} \int_{-\infty}^{\infty} \rho(z) e^{iqz} dz, \quad (1)$$

определяемого распределением плотности слоёв

$$\rho(z) = \sum_{i=1}^n \rho_i \left[ f \left\{ -\frac{z - z_i}{\sigma_i} \right\} - f \left\{ -\frac{z - z_{i-1}}{\sigma_{i-1}} \right\} \right] + \rho_s, \quad (2)$$

Здесь  $f\{z\} = \frac{1}{\pi} \int_{-\infty}^z e^{-x/2} dx$ ,  $q = 4\pi \sin \vartheta / \lambda$  – вектор рассеяния ( $\vartheta$  – угол

скользящего падения излучения,  $\lambda$  – длина волны излучения),

$\rho(z) = \frac{2\pi}{\lambda^2 r_{el}} [\delta(z) + i\beta(z)]$  – комплексная функция изменения электронной

плотности пленки вдоль нормали  $z$  к поверхности ( $r_{el}$  – радиус

электрона,  $\delta$  и  $\beta$  – параметры, отвечающие соответственно за рассеяние и поглощение); для ступенчатой модели разбиения пленки на слои постоянной плотности  $z_i$  – координата границы раздела  $(i+1)$ -го и  $i$ -го слоёв,  $\rho_j$  – плотность  $j$ -го слоя,  $\delta_s$  – плотность подложки, на которую нанесена плёнка,  $\sigma_i$  – шероховатость, имитирующая статистическое нарушение электронной плотности на межслоевой границе.

Как показано в работе [5],  $I_{sf}(q)$  – интенсивность рассеяния от плёнки на подложке – можно представить в виде суммы интенсивностей рассеяния от свободной плёнки  $I_f(q)$ , подложки  $I_s(q)$  и удвоенного произведения мнимых частей амплитуды рассеяния  $\text{Im}R(q)$  от плёнки ( $f$ ) и подложки ( $s$ ):

$$I_{sf}(q) = |\Re_{sf}(q)|^2 = I_s(q) + I_f(q) + \Re_f(q) \cdot \Re_s^*(q) + \Re_s(q) \cdot \Re_f^*(q). \quad (3)$$

Если учесть, что действительная и мнимая части амплитуды рассеяния  $\text{Re} \Re_s(q) \equiv 0$  и  $\text{Im} \Re_s(q) = -\frac{8\pi^2 \delta_s}{\lambda^2 q^2}$ , то

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

### Средняя плотность – инвариант рефлектометрической кривой

Для свободной плёнки можно вычислить автокорреляционную функцию  $Q_f(u)$  путем преобразования Фурье от интенсивности рассеяния:

$$Q_f(u) = \frac{\int_{\max(0,u)}^{\min(D,D+u)} \rho(z)\rho(z+u)dz}{\pi(4\pi)^2} = \frac{1}{\pi(4\pi)^2} \int_0^\infty q^2 I_f(q) \exp(-iqu) dq. \quad (5)$$

Тогда взвешенная рассеивающая плотность будет определяться формулой [10]:

$$\rho_{aw} = \frac{1}{D} \sqrt{\int_0^D Q(u) du}. \quad (6)$$

Таким образом, средневзвешенная плотность для свободной пленки может быть вычислена по кривой рассеяния с помощью (6) и является рефлектометрическим инвариантом наряду с толщиной  $L$  и периодом повторения  $d$  в многослойной пленке. Поскольку в рефлектометрии

профиль электронной плотности часто характеризуют безразмерным параметром  $\delta(z) = \frac{\lambda^2}{2\pi} r_e \operatorname{Re} \rho(z)$ , соответствующим отклонению от единицы действительной части показателя преломления  $n = (1 - \delta) - i\beta$ , то сравнивая средневзвешенные  $\delta_{aw}(z)$  моделей, получаемых в процессе оптимизации, можно отобрать наиболее вероятные решения. Для пленки на твердой подложке (в отличие от свободно висящей пленки) возможно только вычисление аналога автокорреляционной функции  $\check{Q}(u)$  с исключением влияния на результат области ПВО на рефлектометрической кривой. Однако, вычисляя два варианта  $\check{Q}(u)$ , соответственно исключая участок вблизи ПВО с занижением и завышением диапазона, их можно использовать для оценки верхнего и нижнего предела средневзвешенной плотности. Реализованная в BARD возможность вычисления  $Q(u)$  и  $\delta_{aw}(z)$  дает дополнительные критерии оценки адекватности получаемых профилей электронной плотности пленки путем сравнения средневзвешенных плотностей моделей.

### **Возможности эксперимента с однотипными пленками на нескольких разных подложках**

Как показала практика, задача отыскания наилучших значений параметров путем минимизации квадратичного функционала, характеризующего различия между измеренными и рассчитанными по моделям интенсивностями, намного перспективнее для свободной плёнки, чем для плёнки на подложке. Однако, чтобы выделить рассеяние от свободной пленки из рефлектометрической кривой для реального образца, требуется использовать специальные математические приемы. Показано, что при формировании однотипной плёнки на двух разных подложках можно, используя выражения (3) и (4) и измерив кривые рассеяния  $I_{s1f}(q)$  и  $I_{s2f}(q)$  от одинаковых плёнок на двух разных подложках  $s1$  и  $s2$ , определить  $I_f(q)$  и мнимую часть амплитуды рассеяния от свободной пленки той же структуры:

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

$$\operatorname{Im} \mathfrak{R}_f(q) = \frac{q^2 \lambda^2}{16\pi^2} \frac{I_{s1f}(q) - I_{s2f}(q)}{\delta_{s2} - \delta_{s1}} + \frac{4\pi^2}{\lambda^2 q^2} (\delta_{s1} + \delta_{s2}). \quad (8)$$

Модуль действительной части амплитуды рассеяния вычисляется по формуле:

$$|\operatorname{Re} \mathfrak{R}_f(q)| = \sqrt{I_f(q) - [\operatorname{Im} \mathfrak{R}_f(q)]^2}. \quad (9)$$

В результате задача нахождения  $\mathfrak{R}_f(q)$  сводится к проблеме устранения модуля действительной части  $\mathfrak{R}_f(q)$ . Частоты, определяющие строение  $\operatorname{Re} \mathfrak{R}_f(q)$  и  $\operatorname{Im} \mathfrak{R}_f(q)$ , одни и те же, а следовательно, для их выявления можно воспользоваться одним из методов, описанных в [6]. В ряде случаев можно использовать более простой алгоритм, связанный со структурой кривой. Поскольку  $\operatorname{Re} \mathfrak{R}_f(q)$  – кусочно-монотонная, непрерывная функция с несущей частотой, определяемой толщиной плёнки, и точки расположены достаточно часто (при измерениях это именно так), то по поведению трёх последовательно расположенных точек можно судить о смене знака. Как правило,  $\operatorname{Re} \mathfrak{R}_f(q)$  отличается от  $|\operatorname{Re} \mathfrak{R}_f(q)|$  тем, что у каждой чётной волны знак следует изменить на отрицательный [5]. Зная действительную и мнимую части амплитуды рассеяния свободной пленки, нетрудно восстановить профиль ее рассеивающей плотности с помощью обратного Фурье-преобразования:

$$\delta_f(z) = \frac{\lambda^2}{16\pi^3} \int q \cdot \mathfrak{R}(q) \cdot e^{-iqz} dq. \quad (10)$$

Знаковая проблема может быть решена однозначно, если есть возможность приготовить образцы с однотипными плёнками на трех подложках с различными электронными плотностями:  $\delta_{s1}$ ,  $\delta_{s2}$ ,  $\delta_{s3}$ . В этом случае задача сводится к решению трёх уравнений относительно  $\operatorname{Re} \mathfrak{R}_f(q)$  и  $\operatorname{Im} \mathfrak{R}_f(q)$

$$\begin{cases} I_{s1f}(q) = I_{s1}(q) + I_f(q) + \mathfrak{R}_f(q) \cdot \mathfrak{R}_{s1}^*(q) + \mathfrak{R}_{s1}(q) \cdot \mathfrak{R}_f^*(q), \\ I_{s2f}(q) = I_{s2}(q) + I_f(q) + \mathfrak{R}_f(q) \cdot \mathfrak{R}_{s2}^*(q) + \mathfrak{R}_{s2}(q) \cdot \mathfrak{R}_f^*(q), \\ I_{s3f}(q) = I_{s3}(q) + I_f(q) + \mathfrak{R}_f(q) \cdot \mathfrak{R}_{s3}^*(q) + \mathfrak{R}_{s3}(q) \cdot \mathfrak{R}_f^*(q), \end{cases} \quad (11)$$

так как  $I_{s1f}(q)$ ,  $I_{s2f}(q)$ ,  $I_{s3f}(q)$  будут получены как данные рефлектометрического эксперимента, а  $\text{Re}\mathfrak{K}_s = \frac{8\pi^2}{\lambda^2} \frac{\delta_s}{q^2} = -K_0 \frac{\delta_s}{q^2}$  и

$\text{Im}\mathfrak{K}_s = -\frac{8\pi^2}{\lambda^2} \frac{\delta_s}{q^2} = -K_0 \frac{\delta_s}{q^2}$  для выбранных подложек известны.

Возможная плохая обусловленность матрицы уравнений может преодолеваться методом регуляризации Тихонова.

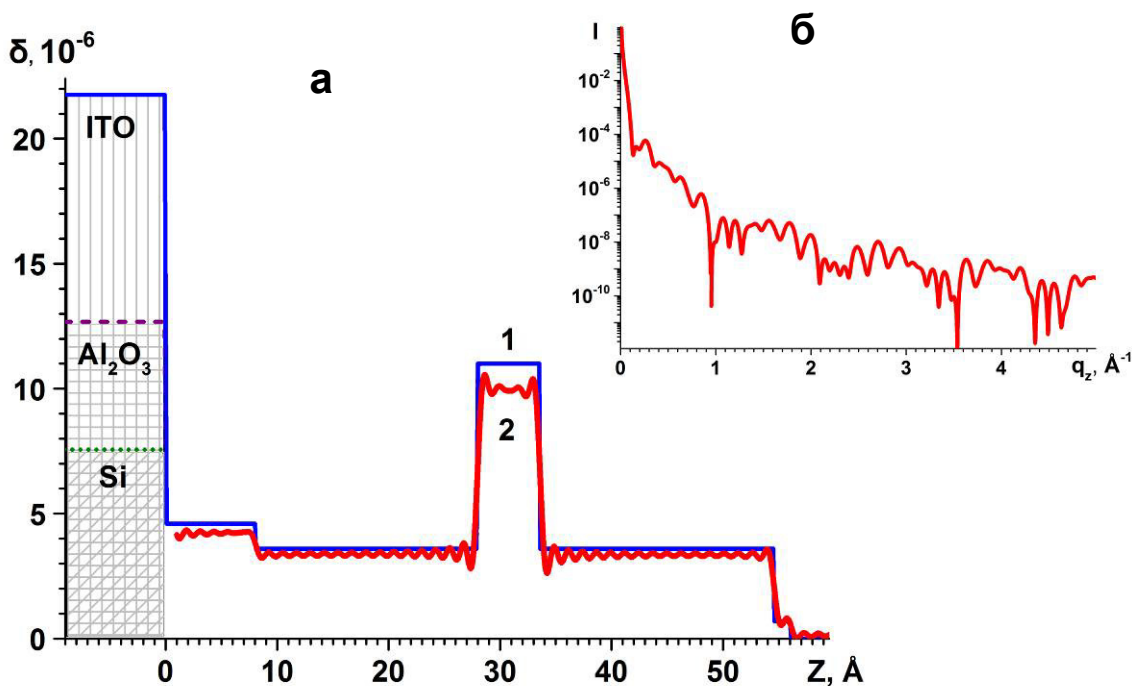
В этом случае действительную и мнимую части амплитуды рассеяния удастся вычислить разностным методом с учетом знаков при условии, что хоть одна разность поглощений подложек ненулевая:

$$\begin{aligned} \text{Im}\mathfrak{K}_f(q) = & \\ = & \frac{I_{s1f}(q)\{\beta_{s3} - \beta_{s2}\} + I_{s2f}(q)\{\beta_{s1} - \beta_{s3}\} + I_{s3f}(q)\{\beta_{s2} - \beta_{s1}\}}{[\delta_{s1}\{\beta_{s2} - \beta_{s3}\} + \delta_{s2}\{\beta_{s3} - \beta_{s1}\} + \delta_{s3}\{\beta_{s1} - \beta_{s2}\}]} \cdot \frac{q^2}{2K_0} + \\ & + \frac{\delta_{s1}^2\{\beta_{s2} - \beta_{s3}\} + \delta_{s2}^2\{\beta_{s3} - \beta_{s1}\} + \delta_{s3}^2\{\beta_{s1} - \beta_{s2}\}}{[\delta_{s1}\{\beta_{s2} - \beta_{s3}\} + \delta_{s2}\{\beta_{s3} - \beta_{s1}\} + \delta_{s3}\{\beta_{s1} - \beta_{s2}\}]} \cdot \frac{K_0}{2q^{-2}}; \end{aligned} \quad (12)$$

$$\begin{aligned} \text{Re}\mathfrak{K}_f(q) = & \\ = & \frac{I_{s1f}(q)\{\delta_{s3} - \delta_{s2}\} + I_{s2f}(q)\{\delta_{s1} - \delta_{s3}\} + I_{s3f}(q)\{\delta_{s2} - \delta_{s1}\}}{[\delta_{s1}(\beta_{s2} - \beta_{s3}) + \delta_{s3}(\beta_{s1} - \beta_{s2}) + \delta_{s2}(\beta_{s3} - \beta_{s1})]} \cdot \frac{q^2}{2K_0} + \\ & + \frac{\{\delta_{s1}^2[\delta_{s2} - \delta_{s3}] - \delta_{s2}^2[\delta_{s1} - \delta_{s3}] + \delta_{s3}^2[\delta_{s1} - \delta_{s2}]\}}{[\delta_{s1}(\beta_{s2} - \beta_{s3}) + \delta_{s3}(\beta_{s1} - \beta_{s2}) + \delta_{s2}(\beta_{s3} - \beta_{s1})]} \cdot \frac{K_0}{2q^2}. \end{aligned}$$

Далее снова используем (10) для восстановления искомого профиля плотности пленки.

Результат восстановления профиля продемонстрируем на модельном эксперименте формирования пленки на трёх подложках разной плотности (рис. 1).



**Рис. 1** Модель профиля плотности (а) пятислойной пленки на трех подложках из кремния - Si, сапфира -  $\text{Al}_2\text{O}_3$ , окиси индия-олова - ITO (кривая 1) и результат восстановления этого профиля разностным методом (кривая 2) по соответствующей модели рефлектометрической кривой (б).

Полагаем, что пленка состоит из бислоя стеарата кадмия, который моделируем четырехслойной ячейкой. Модельные слои имеют фиксированные плотности и толщины, соответствующие двум слоям из углеводородных хвостов, окружающих слой с ионами кадмия, и тонкого нарушенного слоя меньшей плотности на границе пленка-воздух. В качестве материала подложек выбраны кремний (Si)  $\{ \delta = 7.56 \cdot 10^{-6}, \beta = 0.21 \cdot 10^{-6} \}$ , сапфир ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ )  $\{ \delta = 12.68 \cdot 10^{-6}, \beta = 0.23 \cdot 10^{-6} \}$  и твердый раствор окиси индия-олова (ITO)  $\{ \delta = 21.75 \cdot 10^{-6}, \beta = 1.99 \cdot 10^{-6} \}$ .

Для выбранных моделей с соответствующими профилями плотности (рис.1а, кривая 1) были смоделированы соответствующие кривые интенсивности рассеяния (обычно получаемые в эксперименте). Из них по формулам (12) найдены действительная и мнимая части амплитуды рассеяния свободной пленки, а также ее интенсивность (рис 1б). Затем с помощью обратного Фурье-преобразования восстановлен профиль плотности пленки (рис.1а, кривая 2), который вполне адекватно отображает модельный профиль как по количеству и

толщинам слоев, составляющих пленку, так и по усредненным значениям  $\rho_i$  каждого слоя.

## Дифференциальная функция Патерсона

В работе [7] было показано, что автокорреляционная функция от  $d\rho/dz$

$$P_F(z) = k \int_{-\infty}^{+\infty} q_z^4 I(q_z) e^{iq_z z} dq_z = k' \int \frac{D d\rho(u)}{du} \frac{d\rho(u+z)}{du} du \quad (13)$$

является более информативной для изучения строения многослойной пленки, чем функция  $Q(z)$ . Это обусловлено тем, что производная  $d\rho/dz$  имеет более резкие всплески на межслоевых границах, чем  $\rho(z)$ .  $P_F(z)$  является Фурье-образом эффективной интенсивности зеркального рассеяния и названа "дифференциальной функцией Патерсона" (ДФП), поскольку в характере смены знака экстремумов функции можно усмотреть аналогию с функцией Патерсона в нейтронографии кристаллов. Анализ экстремумов данной функции позволяет найти не только толщины соответствующих слоев пленки, но в ряде случаев даже оценить количественное соотношение их электронных плотностей.

Выделить информацию о структурных параметрах модели пленки можно, применяя к ДФП метод совмещения сдвинутых систем пиков. Набор координат, отвечающих экстремумам функции, определяет систему всех возможных перестановок межслоевых расстояний в исследуемой пленке, а амплитуды пиков определяют соотношения между электронными плотностями слоев. Совмещение нескольких систем пиков, полученных из исходного набора путем сдвигов на соответствующие межслоевые векторы, позволяет интерпретировать пики, совпадающие после наложения, как возможные периоды слоев пленки.

Паразитные осцилляции, возникающие в процессе Фурье-преобразования из-за конечности диапазона интегрирования (ограниченности области измерения экспериментальной кривой  $q \leq q_{\max}$ ) приводят к внесению ошибки за счет уширения и, возможно, сдвига всех характерных пиков на кривой  $P_F(z)$ . Осцилляции такого рода можно подавить, используя, например, функцию Стеклова:

$$\phi(z) = \frac{1}{2\Delta z} \int_{z-\Delta z}^{z+\Delta z} f(x) dx, \quad \Delta z = \pi/q_{\max}, \quad (14)$$

$$P_F^{Steklov}(z) = k \int_0^{q_{\max}} q_z^4 I(q_z) \text{Sinc}\left(\frac{\pi q_z}{q_{\max}}\right) \cos(q_z z) dq_z. \quad (15)$$



Период собственных осцилляций ДФП зависит от величины диапазона измерения: чем больше этот диапазон, тем меньше период собственных осцилляций кривой и тем заметнее на ней особенности, связанные со скачками электронной плотности в поперечном сечении пленки.

При описании профиля электронной плотности пленки ступенчатой моделью (без учета поглощения и шероховатости), ДФП может быть записана в следующем общем виде:

$$P_F(z) = \int e^{iq_z z} dq_z \left| \delta_s - \delta_1 + \delta_N e^{iq \sum_{n=1}^{n=N} d_n} + \sum_{k=1}^{k=N-1} (\delta_k - \delta_{k+1}) e^{iq \sum_{n=1}^{n=k} d_n} \right|^2, \quad (16)$$

где  $D = \sum_{n=1}^{n=N} d_n$  – общая толщина пленки,  $\sum_{i=1}^{i=N} (N - i + 1) = \frac{N(N + 1)}{2}$  –

количество экстремумов функции (без учёта нулевого пика).

Таким образом, в кинематическом приближении ДФП в случае ступенчатой модели плёнки с высокой степенью точности может быть представлена в следующем аналитическом виде:

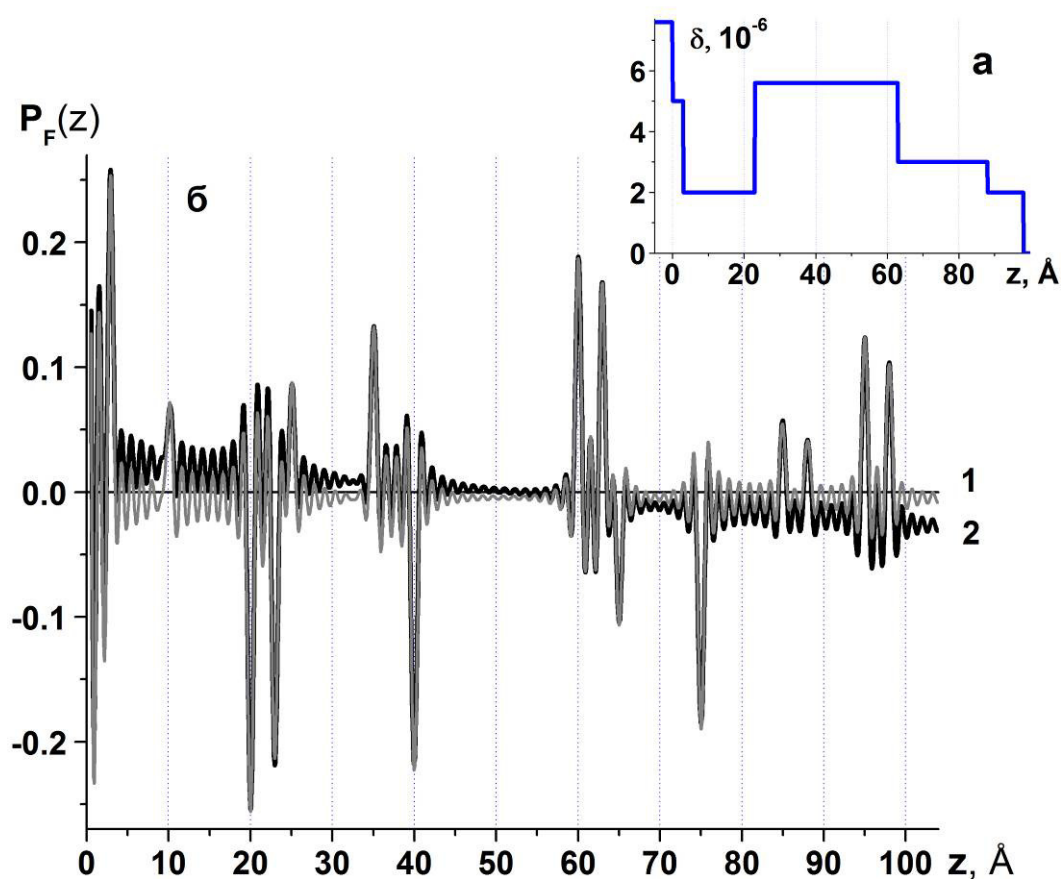
$$P_f(z) = P_0 + \sum_{i=0}^{N_p} C_i \text{Sinc}(q_z^{\max}(z - d_i)) \quad (17)$$

На основании этого, авторами был предложен метод формального определения ряда важнейших параметров слоистых сред – набор характерных межслоевых расстояний  $\{d_i\}$  – толщин характерных электронных областей в поперечном сечении по нормали к образцу, а также числа этих областей. Суть его заключается в определении наилучшего соответствия между экспериментальной ДФП

$$P_F^{\text{exp}}(z) = \text{Fourier}[I^{\text{exp}}(q) \cdot q^4] \quad (18)$$

и её аналитическим представлением (17) путём подгонки аналитического выражения  $P_F(z)$  к экспериментальной кривой с целью нахождения  $\{d_i\}$  и коэффициентов  $C_i$ . Входными данными выступают: диапазон значений  $N_L = [N_{L_{\min}} .. N_{L_{\max}}]$  – количество слоёв, связанное с числом членов ряда  $N_p$  в (17) соотношением  $N_p = N_L(N_L + 1)/2$ ;  $q_z^{\max}$  – максимальный экспериментальный вектор рассеяния. Процесс подгонки проводится для каждого  $N_L$  из заданного диапазона, и на каждом шаге анализируется величина целевой функции. В результате выбираются наилучшие значения  $N_L$  и  $\{d_i\}$ , которые и используются для дальнейшего анализа в

качестве входных параметров стандартной процедуры обратной задачи рефлектометрии с использованием ступенчатой модели плёнки. Применимость метода демонстрируется для модели 5-ти слойной плёнки (рис. 2).



**Рис. 2** Профиль плотности ступенчатой модели 5-слойной пленки (а) и дифференциальные функции Патерсона (б): результат подгонки аналитического выражения (кривая 1) к кривой, полученной по данным рефлектометрического эксперимента (кривая 2).  $P_F(z)$  содержит 15 характерных пиков.

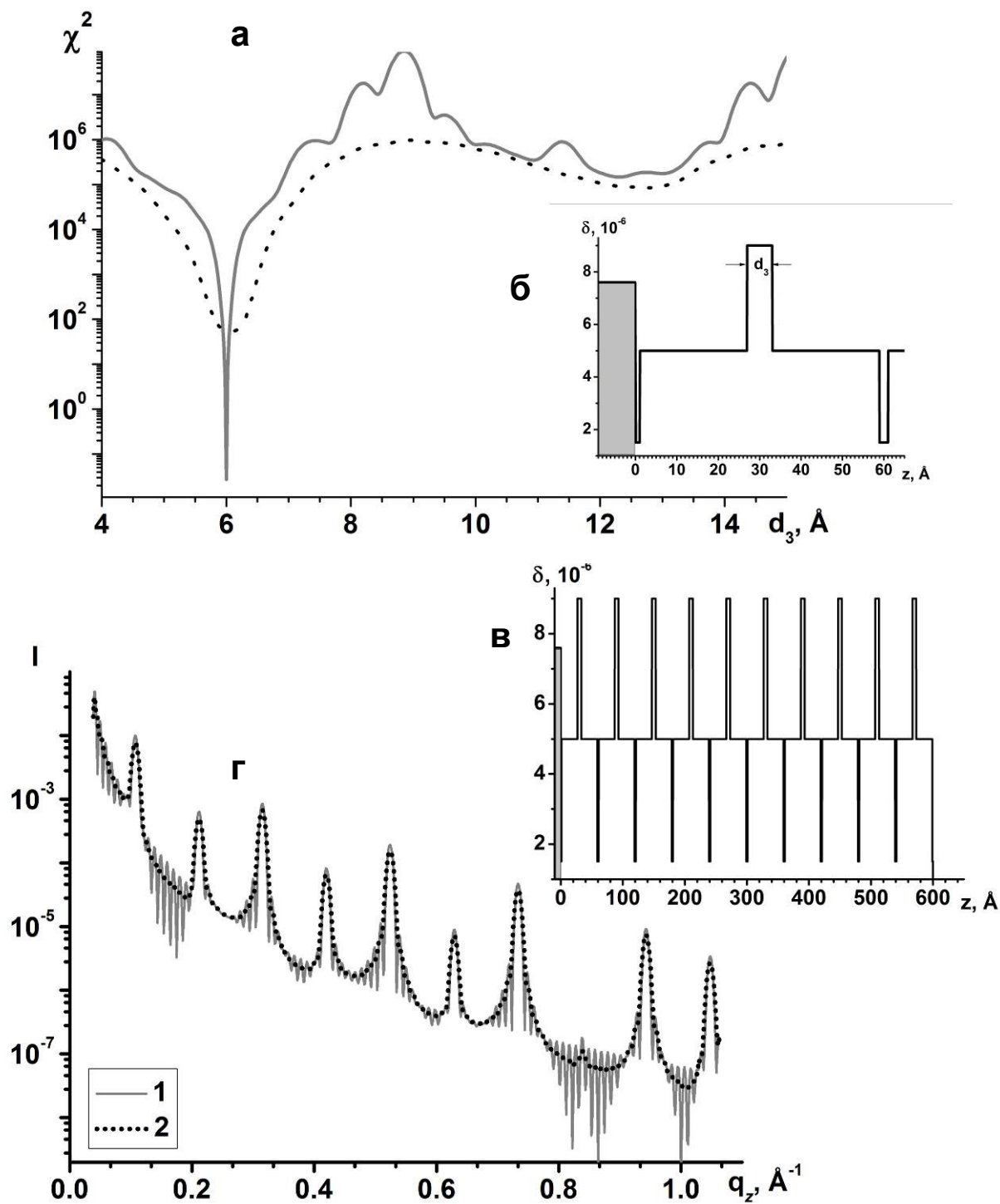
Искомая функция  $P_F(z)$ , представленная на кривой 1 (рис. 2б), получена путем приближения к модельной кривой 2, вычисленной для заданного профиля плотности (рис. 2а). Можно видеть, что даже в сложном случае пятислойной пленки удается найти положения всех пятнадцати пиков, определяющих толщины слоев модели.

## Оптимизация со сглаживанием кривой для уменьшения влияния экспериментальных искажений

Отметим, что экспериментальная кривая интенсивности и ее расчетный аналог могут быть наглядно представлены лишь в логарифмическом масштабе, так как спадение интенсивности на 7–8 порядков на измеряемом диапазоне исключает возможность представления их в абсолютном масштабе. Кроме того, перепад высот на экспериментальной кривой всегда менее резкий, чем на расчетной (из-за наложения эффектов размывания резких границ слоев и погрешностей эксперимента), т.е. экспериментальная кривая оказывается более гладкой в области низких значений интенсивности.

Все это приводит к разному масштабу в членах минимизационного функционала  $\chi^2$ , практически неисправимому даже введением весовых функций  $w_i$ , к резкой овражности строения поверхности  $\chi^2$ , а в конечном итоге, к существенному усложнению процесса оптимизации при поиске наилучших параметров модели. Следует отметить, что при этом процесс минимизации может обрываться по дороге к минимуму, застревая в «узких щелях и оврагах» поверхности минимизируемого функционала. В BARD такая ситуация преодолевается использованием метода сглаживания, т.е. искусственного расширения «щели». Поскольку сглаживание непосредственно поверхности  $\chi^2$  может привести к исчезновению искомым минимумов, следовательно, лучше отказаться от незначимых на начальных этапах деталей экспериментальной кривой интенсивности (рис.3).

В качестве примера была использована модель многослойной пленки (рис. 3в), состоящей из десяти повторений однотипной элементарной слоевой ячейки (рис. 3б). На рис. 3а продемонстрированы возможности уменьшения овражности поверхности функционала  $\chi^2$  при замене модельной кривой интенсивности рассеяния (рис. 3г, кривая 1) на сглаженную (кривая 2) в процессе минимизации, а также облегчить процесс поиска решения, реализуя алгоритм автоматического сглаживания по заданным угловым диапазонам функционала невязок на каждом шаге процесса минимизации. Следует подчеркнуть, что процесс сглаживания экспериментальной кривой имеет самостоятельное значение – устранение незначимых участков кривой с резкими перепадами высот. Метод также позволяет количественно охарактеризовать границы стабильности найденных параметров.



**Рис. 3** Уменьшение овражности сечения  $\chi^2$  (а) при поиске параметра **d** толщины наиболее плотного слоя модели молекулярной ячейки (б), десятикратным повторением которой на кремниевой подложке образована многослойная пленка (в): сечения  $\chi^2$  (кривые 1 и 2), вычисленные по расчетной (1) и сглаженной по 7-ми точкам (2) рефлектометрическим кривым (г) для описанной модели пленки.

## Анализ сечений $\chi^2$ : одномерных, двумерных и многомерных

Уже одномерные сечения функционала невязок по выбранному параметру, аналогичные представленному на рис. 3а, позволяют наблюдать возможные смещения локальных минимумов при изменении отдельных параметров модели профиля плотности в заданной области значений и тем самым облегчают поиск глобального минимума.

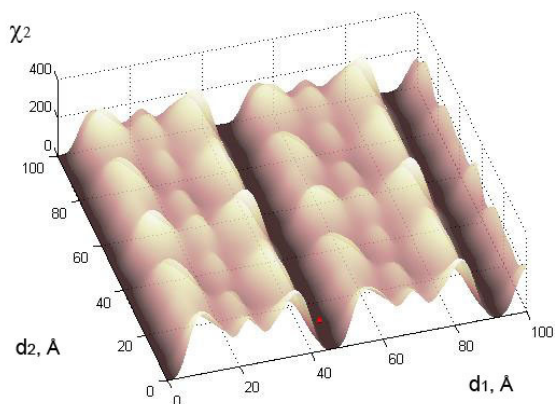
Для выбора оптимальной модели среди набора решений, соответствующих локальным минимумам с близкими значениями  $\chi^2$ , часто удобно использовать графические методы анализа двумерных и многомерных сечений, позволяющие наблюдать движение локальных минимумов при изменении одного или одновременно нескольких параметров модели. Алгоритм вычисления для анализируемой модели 2-х и 3-х мерных сечений функционала  $\chi^2$  по заданному набору параметров реализован в комплексе BARD.

Использование двумерных сечений наиболее эффективно для анализа структурных особенностей однослойной пленки. В этом случае можно рассматривать только два параметра слоя:  $d$  и  $\delta$ , (шероховатость и поглощение гораздо меньше влияют на изменение поверхности  $\chi^2$ ) и, построив двумерное сечение  $\chi^2$  в заданной области поиска, сразу получить искомое решение в графическом виде, не прибегая к сложной процедуре минимизации. Одновременно можно визуально оценить, какова погрешность полученных параметров, насколько устойчиво решение и единственно ли оно в заданной области.

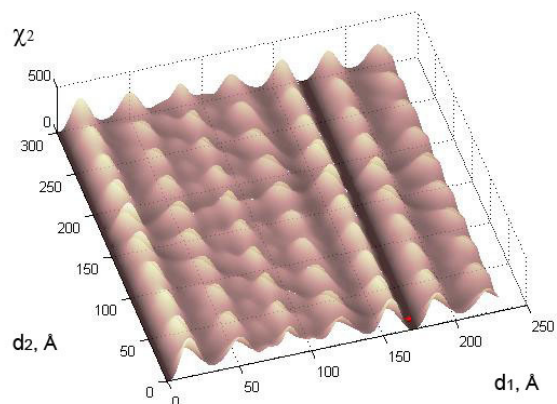
При поиске модели пленки с двумя и более слоями количество варьируемых параметров возрастает, и отдельные двумерные сечения не дают полного представления о многомерной области вблизи минимума. Однако и здесь, исследуя суперпозицию сечений, можно проследить тенденцию изменения параметров, оценить особенности поведения функционала невязок: скорость перемещения и изменение формы областей экстремумов, их количество в заданных границах и т.п. Конечно, в данном случае невозможно полностью перебрать все множество решений, но и дискретные пробы помогают выявить наиболее вероятное из них и проанализировать его устойчивость. На рис. 4 продемонстрированы возможности использования двумерных сечений функционалов  $\chi^2$  рефлектометрических кривых, для поиска моделей профиля электронной плотности образцов (а) и (б) тонких пленок оксида гафния разной толщины [8]. Как справедливо указано в [8], в процессе численной нелинейной оптимизации даже для простых моделей вполне

типично нахождение огромного набора локальных минимумов, что требует приложения немалых усилий при выборе оптимального решения.

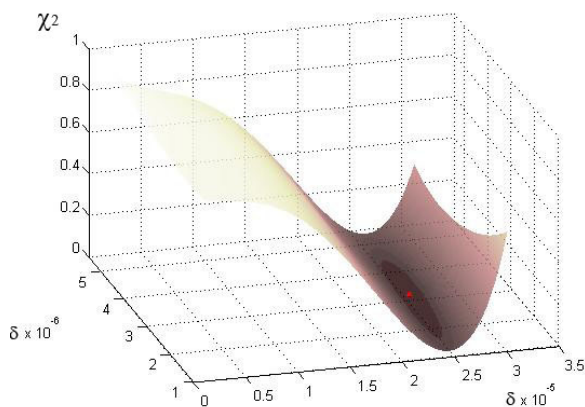
**a1**



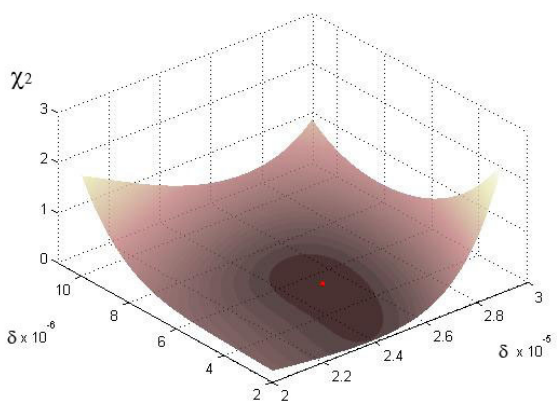
**б1**



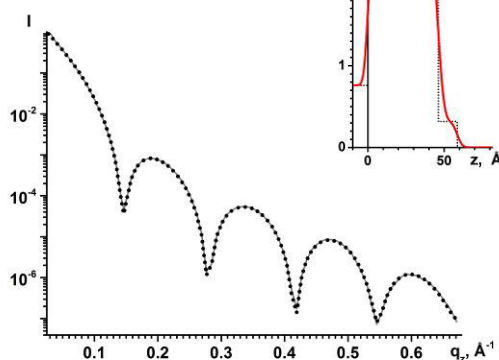
**a2**



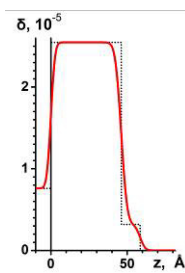
**б2**



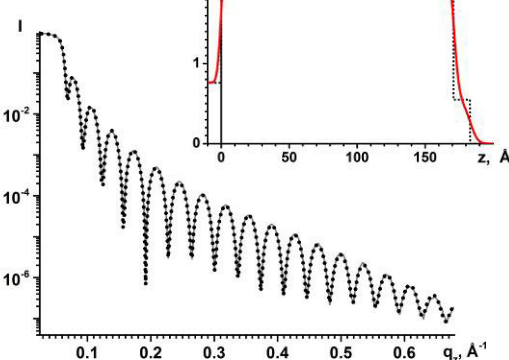
**a4**



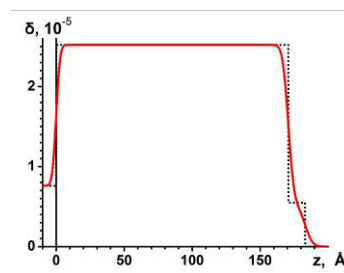
**a3**



**б4**



**б3**

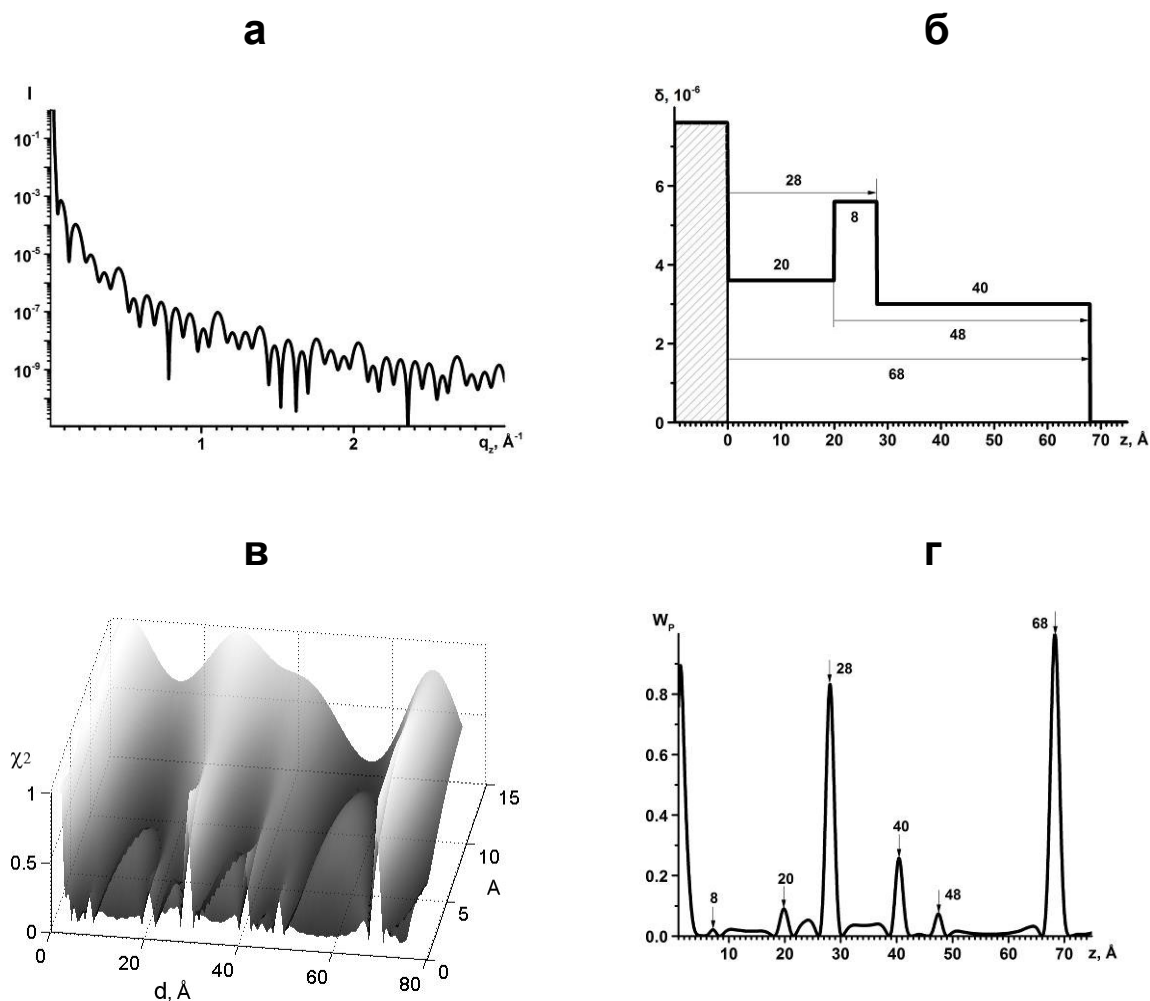


**Рис. 4** Пример использования двумерных сечений для оценки параметров  $\mathbf{d}$  (a1) и (б1) и  $\delta$  (a2) и (б2) при поиске профилей электронной плотности (a3) и (б3) двух пленок оксида гафния на кремниевых подложках по рефлектометрическим кривым (a4) и (б4) для реальных образцов (а) и (б) соответственно.

В данном примере для рефлектометрических кривых I (рис. 4а4 и б4) каждого из исследуемых образцов оказалось достаточно построения двух двумерных сечений  $\chi^2$  по парам параметров  $\{d_1, d_2\}$  (рис. 4а1 и б1) и  $\{\delta_1, \delta_2\}$  (рис. 4а2 и б2) искомой двухслойной модели. Эти сечения позволяют получить представление о характере поверхности функционала и выявить области минимумов  $\chi^2$ . Использование их в процессе оптимизации в качестве стартовой модели позволило восстановить профили электронной плотности обеих пленок (рис. 4а3 и б3). Толщины пленок оксида гафния (без учета нарушенного менее плотного слоя на поверхности пленки) составляют  $d(a) = 46 \pm 1 \text{ \AA}$  и  $d(b) = 171 \pm 1 \text{ \AA}$  соответственно, а параметры электронной плотности  $\delta = (2.55 \pm 0.05) \cdot 10^{-5}$  хорошо согласуются с известными в литературе значениями  $\delta$  для объемных образцов оксида гафния.

### **Применение математического аппарата вейвлет-преобразований для анализа рефлектометрических данных**

Вейвлеты – это обобщенное название семейств математических функций определенной формы, локальных во времени и по частоте, в которых все функции получаются из одной базовой (порождающей) посредством ее сдвигов и растяжений. Вейвлеты имеют вид коротких волновых пакетов с нулевым средним значением, локализованных по оси аргументов (независимых переменных), инвариантных к сдвигу и линейных к операции масштабирования (сжатия/растяжения). Теория вейвлетов не является фундаментальной физической теорией, но она дает удобный и эффективный инструмент для решения многих практических задач. Вейвлет-преобразования (ВП) наиболее эффективно могут быть использованы в случае ограниченности области определения исследуемого сигнала. Именно такая ситуация реализуется в рефлектометрическом эксперименте, поскольку измерения интенсивности могут быть осуществлены только в ограниченном угловом диапазоне, определяемом техническими возможностями прибора. В таких условиях обычно используемое Фурье-преобразование становится неприменимым из-за известного эффекта паразитных осцилляций обрыва (Гиббса). И для вычисления Фурье-образов приходится использовать специальные методы, например, алгоритм вычисления образа финитных функций [9]. Использование же вейвлет-преобразования не встречает таких трудностей.



**Рис. 5** Результат анализа особенностей рефлектометрической кривой (а), построенной для модели трехслойной пленки (б), с использованием вейвлет-преобразований при варьировании параметра масштабирования  $A$  (в) и при  $A=2$  (г), позволяющего проявить особенности слоевой упорядоченности пленки.

В отличие от оконного преобразования Фурье, вейвлет-преобразование одномерных сигналов обеспечивает постоянное разрешение при анализе сигналов сразу в двух пространствах. Одна из главных и особенно плодотворных идей вейвлетного преобразования сигналов на различных уровнях разложения заключается в разделении функций на две группы: аппроксимирующую – грубую, с достаточно медленной динамикой изменений, и детализирующую – с локальной и быстрой динамикой изменений на фоне плавной динамики, с последующим их дроблением и детализацией на других уровнях декомпозиции сигналов. По сравнению с разложением сигналов на ряды Фурье вейвлеты способны с гораздо более высокой точностью представлять локальные особенности сигналов, вплоть до разрывов 1-го



рода (скачков). С целью использования этих возможностей в BARD был реализован весь спектр вейвлет-преобразований, разработанный в настоящее время: непрерывное (интегральное), стационарное вейвлет-преобразования и кратномасштабный анализ [10].

На рис. 5 приведён пример применения вейвлет-преобразования для анализа рефлектометрической кривой  $I(q_z)$  (рис. 5а), полученной для модели  $\delta(z)$  трёхслойной плёнки на подложке (рис. 5б). Построение вейвлет-преобразования от эффективной интенсивности зеркального рассеяния  $q_z^4 \cdot I(q_z)$  (рис. 5в) с вариацией параметра масштабирования  $A$  от 1 до 15 позволяет наблюдать характерные особенности этого функционала. Набор пиков, соответствующих экстремумам функции, определяет систему всех возможных перестановок межслоевых расстояний в исследуемой плёнке (в данном примере  $A=2$ ), где сохранены существенные особенности, а осцилляции обрыва наименее заметны (рис. 5г).

## Заключение

Сложность решения обратной задачи рефлектометрии требует наличия набора различных алгоритмов в рамках единой методологии исследования структурных особенностей многослойных пленок, как без подложки, так и сформированных на твердых подложках. Предложенные в работе оригинальные элементы математического аппарата в совокупности с рядом традиционных процедур, специально адаптированы и объединены в согласованную систему, пригодную для всестороннего анализа экспериментальных рефлектометрических данных, а также для получения дополнительных сведений и проверки достоверности результатов. Методы, реализованные в программном комплексе BARD, позволяют оценивать устойчивость решений, делать вывод об их справедливости, а также оценивать важнейшие параметры, определяющие структурные особенности исследуемых объектов.

## СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. G.Parrat. Surface studies of solids by total reflection of X-rays. Physical Review, 1954, V.95, N.2, P.359-369.
2. J.Dallant, A.Gibaud. X-Ray and Neutron Reflectivity: Principles and Applications. // Springer, 2009. 348 P.
3. I.Kozhevnikov, L.Peverini, E.Ziegler. Development of a-self consistent free-term approach for studying three-dimensional morphology of a thin film. // Phys.Rev. B, 2012, 85, 125439.
4. Астафьев С.Б., Щедрин Б.М., Янусова Л.Г. Программный комплекс BARD для анализа строения многослойных структур по данным

- рефлектометрии. // Кристаллография, 2012, Т.57, №1, С.141-150.  
S.B. Astaf'ev, B.M. Shchedrin, and L.G. Yanusova. Basic Analysis of Reflectometry Data Software Package for the Analysis of Multilayered Structures According to Reflectometry Data. // Crystallography Reports, 2012, Vol. 57, No. 1, p. 134–143.
5. Астафьев С.Б., Щедрин Б.М., Янусова Л.Г. Решение обратной задачи восстановления строения плёнки по данным рефлектометрии // Прикладная математика и информатика. 2005. №21. С.19-29.  
S.B. Astaf'ev, B.M. Shchedrin, L.G. Yanusova. The inverse problem of estimating the film structure from X-ray reflection data. // Computational Mathematics and Modeling (Springer), 2006, Vol. 17, Issue 3, p. 203-210.
  6. М.Г.Серебренников, А.А. Первозванцев. Выделение скрытых периодичностей. М.: Наука. 1965, 244 С.
  7. Астафьев С.Б., Щедрин Б.М., Янусова Л.Г. Оценка характерных параметров модели многослойной плёнки с использованием дифференциальной функции Патерсона // Кристаллография, 2010, Т.55, №1, С.134-142.  
S.B. Astaf'ev, B.M. Shchedrin, and L.G. Yanusova. Estimation of the Characteristic Parameters of the Multilayered Film Model Using the Patterson Differential Function. // Crystallography Reports, 2010, Vol. 55, No. 1, p. 127–135.
  8. Ю.О. Волков, И.В. Кожевников, Б.С. Роцин, Е.О. Филатова, В.Е. Асадчиков. Модельный подход к решению обратной задачи рефлектометрии и его применение для исследования внутренней структуры пленок оксида гафния. // Кристаллография, 2013, том 58, № 1, с. 113–121.  
Yu. O. Volkov, I.V. Kozhevnikov, B.S. Roshchin, E.O. Filatova, and V.E. Asadchikov. Model Approach to Solving the Inverse Problem of X-Ray Reflectometry and Its Application to the Study of the Internal Structure of Hafnium Oxide Films. // Crystallography Reports. 2013. Vol. 58, No. 1, p160.
  9. Н.М.Андрюшевский. Б.М.Щедрин, В.И.Симонов. Алгоритмы определения атомной структуры наноразмерных кластеров в кристаллах по диффузному рассеянию рентгеновских лучей или нейтронов // Кристаллография, 2004, т.49, вып.5, с.952-959.  
N.M. Andrushevski, B.M. Shchedrin, and V.I. Simonov. Algorithms for Solving Atomic Structures of Nanodimensional Clusters in Single Crystals Based on X-ray and Neutron Diffuse Scattering Data. // Crystallography Reports. 2004. Vol. 49, No. 5, p. 863.
  10. S. Mallat. A Wavelet Tour of Signal Processing. // Academic Press. 2008. 851 P.