

## О Т З Ы В

официального оппонента на диссертацию Кожевникова Игоря Викторовича “Теория дифракции рентгеновского излучения от неоднородных слоистых сред”, представленную на соискание ученой степени доктора физико-математических наук по специальности 01.04.07 – физика конденсированного состояния

Тонкопленочные и многослойные структуры с толщинами слоев в единицы и доли нанометров имеют огромное значение, как для многих разделов фундаментальных исследований, так и для целого ряда важнейших прикладных задач. Большую роль, а в ряде случаев и определяющую роль, для таких структур играют различного рода неоднородности и дефекты – шероховатости, сложная морфология поверхности, разнотолщинности, взаимная и не всегда термодинамически стабильная взаимная диффузия материалов соседних слоев и т.п. На субнанометровом уровне такие статистические неоднородности существуют всегда и многие из них являются принципиально неустранимыми. В связи с этим остро встает вопрос о развитии теории описания и методов исследования таких сложных структур. Рассеяние рентгеновских лучей является одним из наиболее информативных и адекватных поставленной задаче методов. Это связано как с малой длиной волны, так и с неразрушающим характером рентгеновской диагностики.

Рентгеновская рефлектометрия, то есть исследование рассеяния рентгеновских лучей при скользких углах падения, развивается уже более 40 лет, получено большое число впечатляющих результатов, и на первый взгляд может даже показаться, что здесь уже нет каких-то крупных “белых пятен”. Однако до сих пор нет четкого представления о пределах применимости тех или иных широко используемых приближений, традиционным считается использование неких не вполне обоснованных модельных представлений о статистических свойствах шероховатых поверхностей и межслойных границ, практически отсутствуют общие (на уровне теорем) подходы к решению обратных задач, появились новые объекты в виде ламеллярных многослойных структур.

Актуальность и своевременность данной диссертации обусловлена решением именно этих задач. Кратко цели диссертационной работы И.В. Кожевникова можно сформулировать следующим образом: 1) Развитие теории рассеяния рентгеновских лучей в слоисто-неоднородных трехмерных структурах на основе разработанного автором самосогласованного и безмодельного подхода к пространственным и статистическим характеристикам структур; 2) Решение обратной задачи рентгеновской рефлектометрии, т.е. восстановление профиля распределения диэлектрической проницаемости и статистических параметров шероховатости границ раздела по глубине на основе данных по измерению угловой зависимости интенсивности рассеянного рентгеновского излучения;

3) Разработка аналитической теории отражения рентгеновского излучения от произвольных апериодических и ламеллярных многослойных структур; 4) Разработка способов определения скэйлинговых экспонент по in-situ измерениям рентгеновского рассеяния от растущих или эродирующих шероховатых поверхностей.

Диссертация состоит из введения, трех глав, перечня основных результатов и выводов. Общий объем диссертации составляет 356 страниц, включая 168 рисунков, 11 таблиц, список литературы из 225 наименований и список публикаций автора по теме диссертации из 63 наименований, из которых 43 статьи опубликованы в рецензируемых изданиях, рекомендованных ВАК для защиты докторских диссертаций.

**Во Введении** обоснована актуальность темы исследований, изложены цели работы, научная новизна и практическая ценность полученных результатов, приведены основные положения, выносимые на защиту, а также детально отражен личный вклад автора и приведен внушительный список конференций, на которых были апробированы полученные автором результаты. В заключительной части Введения дана краткая (по главам) аннотация содержания диссертационной работы.

Следует отметить, что каждая глава начинается с введения, в котором приводится обзор современного состояния исследований по теме данной главы. Такой стиль изложения помогает более детально прояснить личный вклад автора диссертации и при чтении повышает интерес к представленному материалу.

**В первой главе** “Отражение рентгеновского излучения от шероховатых поверхностей и границ раздела” проводится подробный и максимально строгий теоретический анализ особенностей отражения рентгеновских лучей от шероховатых сред. Основным результатом заключается в выводе в рамках строгого Борновского приближения с искаженными волнами (DWBA) общего выражения для индикатрисы рассеяния. Наиболее примечательным по сравнению с предыдущими широко известными и цитируемыми работами является то, здесь, во-первых, не делается никаких упрощающих предположений о структуре поля невозмущенной волны вблизи поверхности, и, во-вторых, результат не зависит от каких-либо априорных модельных предположений о функции распределения высот шероховатостей. Показано, что в наиболее практически интересных случаях можно ограничиться разложением общих формул в ряд по высоте шероховатостей, ограничившись первым членом, и сделан важный для практики вывод, что спектральную плотность мощности шероховатостей (т.н. PSD-функцию) можно измерять непосредственно из эксперимента.

Автор внимательно проанализировал все развитые ранее подходы и приближения и

на основе своих более общих результатов четко показал в каждом конкретном случае нестыковки или не учет тех или иных предыдущих физических моделей. В частности, справедливо подвергнута критике часто используемая модель, в которой шероховатости заменяются неким плавным переходным слоем. Показана определяющая роль, которую играет соотношение между радиусом корреляции шероховатостей в латеральном направлении и угловыми ширинами индикатрисы рассеяния и размерами особенностей на кривой отражения. Исходя из очевидной аксиомы, что “закон сохранения энергии не может выполняться *приблизительно*”, автор убедительно доказал достоверность своих результатов тем, что и теория возмущений по высоте шероховатостей, и Борновское приближение с искаженными волнами обеспечивают строгое выполнение закона сохранения энергии для произвольной непоглощающей слоисто-неоднородной среды. При этом индикатрису рассеяния в вакуум и в глубь среды следует рассчитывать в первом порядке, а коэффициенты зеркального отражения и прохождения - во втором.

Пожалуй, что только в этой диссертации я впервые увидел исчерпывающий анализ взаимосвязи между четырьмя каналами рассеяния рентгеновского излучения от шероховатой поверхности, т.е. рассеяние в вакуум и в глубь среды, и зеркальное отражение и прохождение при углах падения как меньше, так и больше угла ПВО.

Помимо общих теоретических и, как правило, весьма и весьма громоздких выкладок и формул, несомненным достоинством диссертации являются простые и наглядные оценки и рекомендации, крайне полезные для экспериментаторов. Это касается ограничений на параметр Рэлея, когда среднеквадратичная высота шероховатостей  $\sigma$  не должна превышать 1.5-3 нм; вывод о существовании оптимальной длины волны излучения  $\lambda=16\sigma$ , при которой теория возмущений описывает индикатрису рассеяния с точностью не хуже 10% во всем диапазоне углов рассеяния для PSD-функции любого вида; рекомендации аппаратного характера по выбору ширины приемной щели детектора и углового интервала измерений. И, наконец, четкое изложение вопроса о пределах применимости использования факторов Дебая-Валлера и Нево-Кросе. Так как широко используемые интегральные представления о среднеквадратичной высоте шероховатостей и о радиусах корреляции не дают полного представления о структуре поверхности, то единственной наиболее адекватной характеристикой поверхности (образно говоря, ее “паспортом”) является PSD-функция, которая, к тому же, определяется непосредственно из измеренной индикатрисы рассеяния без каких-либо предположений о ее виде и о функции распределения высот шероховатостей.

К несомненным достоинствам диссертации следует, конечно же, отнести разработанные автором методики определения параметров шероховатых растущих или

эродирующих поверхностей в режиме прямого времени без каких-либо априорных предположений о модели роста или эрозии. Абсолютно оригинальными методами следует признать следующие: 1) Определение зависимости среднеквадратичной высоты шероховатостей от времени напыления или травления позволяет получить вид нелинейного дифференциального уравнения процессов роста или эрозии; 2) Определение таких важных параметров морфологии поверхности, как скэйлинговые экспоненты из анализа асимптотического поведения PSD-функции в области высоких пространственных частот; 3) Однозначное определение PSD-функции внешней поверхности пленки и кросс-корреляционной (интерференционной) PSD-функции на основе измерения одной индикатрисы рассеяния при падении рентгеновского пучка вне области полного внешнего отражения; 4) Процедура разделения формирования шероховатостей внешней поверхности пленки на два вклада, один из которых обусловлен наличием исходной шероховатости подложки, а второй связан с собственной шероховатостью пленки, которая вызвана случайными флуктуациями поверхности непосредственно в процессе роста или эрозии.

**Во второй главе** “Обратные задачи рентгеновской рефлектометрии” излагаются результаты, полученные автором по разработке новых подходов к решению обратных задач рентгеновской рефлектометрии. В отличие от часто используемого метода фитирования, т.е. многократного решения прямых задач и сравнения с экспериментом, в диссертации развит гораздо более эффективный и, что самое главное, модельно независимый подход к определению профиля диэлектрической проницаемости по глубине  $\varepsilon(z)$  непосредственно из данных по измерению коэффициента отражения в зависимости от угла скольжения падающего пучка. Метод основан на том, что на профиле диэлектрической проницаемости слоисто-неоднородных структур заведомо существуют так называемые особые точки (границы раздела), в которых либо сам профиль, либо его производные испытывают скачкообразное изменение.

Следует особо подчеркнуть, что для доказательства основных положений диссертации автор на протяжении всей диссертации приводит множество хорошо подобранных модельных расчетов и соответствующих рисунков. Так, в главе 2 имеются очень убедительные примеры, которые демонстрируют уникальную чувствительность метода рентгеновской рефлектометрии даже к предельно малым особенностям на профилях  $\varepsilon(z)$ , которые могут быть реконструированы развитыми автором методами с высокой точностью, если кривая отражения измерена в достаточно широком угловом интервале. Помимо модельных расчетов автор уделил большое внимание обработке многочисленных экспериментальных данных, полученных в соавторстве с ним и, думаю,

по его инициативе, где было показано, что разработанные подходы успешно применимы к исследованиям реальной внутренней структуры пленок различных материалов на кремниевых подложках, в том числе и к анализу тонкой структуры границ раздела, которая возникала из-за взаимной диффузии, из-за химических реакций, имплантации, а также наличия адгезионного слоя на поверхности.

Считаю очень красивым разработанный автором новый подход к решению такой, казалось бы, неразрешимой задачи, как фазовая проблема в рентгеновской рефлектометрии. Оказалось, что для этого достаточно непрерывно измерять коэффициент отражения и его первую производную в зависимости от времени непосредственно в процессе роста слоистой структуры.

Разработан также самосогласованный итерационный подход для исследования трехмерной структуры пленочных покрытий, который позволяет одновременно восстанавливать профиль диэлектрической проницаемости по глубине и определять статистические параметры шероховатостей. Он основан на измерениях, как угловой зависимости коэффициента отражения, так и индикатрис рассеяния при разных углах скольжения падающего излучения. Еще одним важным результатом является демонстрация возможности восстановления не только профиля диэлектрической проницаемости, но и профилей концентраций химических элементов, составляющих образец. Это достигается путем использования разных длин волн падающего излучения.

**В третьей главе** “Отражение рентгеновского излучения от аперидических и ламеллярных многослойных структур” рассматриваются обратные задачи синтеза, т.е. конструирование аперидических и ламеллярных многослойных широкополосных структур, которые в самые последние годы привлекают все большее и большее внимание.

В этой главе с привлечением интегральной формы волнового уравнения и использованием метода стационарной фазы построена аналитическая теория отражения рентгеновского излучения от произвольных многослойных интерференционных структур (МИС) с монотонно изменяющимся периодом. Отличное владение различными разделами математики здесь, как и выше, позволило автору разработать красивый оригинальный подход к решению обратной задачи синтеза широкополосных МИС с заранее заданными спектральными характеристиками, который основан на разумном сочетании аналитических и численных расчетов. Более того, автору удалось так упростить достаточно сложное выражение для спектрального коэффициента отражения, что практически без потери точности задача свелась к простой и быстрой итерационной процедуре и к получению начального аналитического приближения даже для весьма сложного профиля кривой отражения. Тем самым были существенно преодолены хорошо известные

специалистам проблемы с глобальной минимизацией функции невязки. Приведенные рисунки (типа мавзолея Тадж-Махал и др.) – это убедительное свидетельство работоспособности метода. Кроме того, развитый автором подход был успешно реализован также и при практическом изготовлении ряда широкополосных многослойных зеркал, предназначенных для работы в жестком рентгеновском и в экстремальном ультрафиолетовом диапазонах.

В заключительной части этой главы развита теория дифракции рентгеновского излучения от ламеллярных многослойных структур (ЛМС), которые представляют собой многослойные протяженные параллельные ламеллы (полоски) с произвольной формой, расположенные периодически на подложке. Общая теория основана на методе связанных волн, которую в одномодовом режиме, критерии выбора которого также указаны автором, удалось свести к более простой аналитической теории дифракции, результаты которой полностью совпадают с результатами строгой теории. Самый интересный результат заключается в том, что путем специального выбора параметров ЛМС (период ЛМС, скважность, ширина и период ламелл) можно значительно (на порядки) уменьшить ширину брэгговского отражения (супермонокроматизация). Как и выше, развитая автором теория была успешно использована при практическом изготовлении ЛМС.

Таким образом, характеризуя докторскую диссертацию И.В. Кожевникова в целом, следует отметить, что она представляет собой не просто крупное научное достижение, а новое научное направление в области безмодельного подхода к исследованию прямых и обратных задач рентгеновской рефлектометрии реальных слоисто-неоднородных структур.

По диссертации можно сделать несколько замечаний, часть из которых носит характер пожеланий, которые не влияют на общую высокую оценку диссертации:

1. Из общих соображений представляется, что под знаками интегралов по  $z$  и  $z'$  в формулах (1.22)-(1.27) помимо произведения средних значений  $\langle \Delta\epsilon(z,0) \rangle \langle \Delta\epsilon(z',0) \rangle$  должны еще входить корреляционные члены типа  $\langle \Delta\epsilon(z,0) \Delta\epsilon(z',0) \rangle$ , однако этот вопрос в работе не обсуждается.

2. На стр. 36 приведена формула  $q = k\sqrt{\epsilon_+ \cos\theta'}$ , которая следует из закона преломления Снеллиуса, где, согласно (1.46), величина  $q$  должна быть действительной. Следует ли это понимать так, что и диэлектрическая проницаемость  $\epsilon_+$  также считается действительной, т.е. не учитывается поглощение.

3. Большое внимание в работе уделено доказательству строгого соблюдения закона сохранения энергии, но это сделано лишь для непоглощающей среды. Возникает

естественный вопрос, почему не исследован более общий случай, т.е. с учетом диссипативного поглощения в среде.

Диссертация изложена четко, грамотно, построена логически безупречно, несмотря на огромное количество громоздких формул и обилие обозначений разных величин и параметров, она читается с большим интересом. Чувствуется высочайшая квалификация и научная зрелость ее автора. Все шесть научных положений, выносимых на защиту, сформулированы правильно и обоснованно. Многочисленные высокого качества рисунки и графики хорошо иллюстрируют основные результаты и защищаемые положения. Основные научные результаты и предсказания подтверждены экспериментально как в работах, опубликованных им в соавторстве с экспериментаторами, так и в публикациях ряда других научных групп. Автор умеет давать простую и наглядную физическую интерпретацию полученным результатам. Научный уровень диссертации явно превосходит средний уровень докторских диссертаций. Основные результаты диссертации соискателя опубликованы в ведущих рецензируемых отечественных и международных журналах, таких как ЖЭТФ, Кристаллография, Phys. Rev. B., Appl. Phys. Lett., Appl. Optics, Nucl. Instr. Meth. A, Optics Express, Appl. Surf. Science, Thin Solid Films, J. of Physics: Condensed Matter. др. Результаты диссертации докладывались на многочисленных представительных совещаниях и конференциях и получили высокую оценку специалистов. Автореферат дает исчерпывающее представление о материале диссертации.

Считаю, что по объему полученных результатов, их новизне, актуальности, практической и научной значимости представленная работа соответствует требованиям ВАК РФ, предъявляемым к докторским диссертациям, а ее автор, Игорь Викторович Кожевников, вне всякого сомнения, заслуживает присуждения ему искомой ученой степени доктора физико-математических наук по специальности 01.04.07 – физика конденсированного состояния.

Профессор кафедры физики твердого тела  
физического факультета МГУ имени М.В. Ломоносова  
доктор физико-математических наук  
03 марта 2014 г.

 В.А. Бушуев

Подпись проф. В.А. Бушуева заверяю  
декан физического факультета МГУ, профессор

 Н.Н. Сысоев

