

О Т З Ы В

официального оппонента на диссертационную работу 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

Прогресс в изготовлении многослойных рентгеновских элементов – в первую очередь, зеркал и дифракционных решеток с заданной толщиной слоев и субатомной шероховатостью и перемешиванием интерфейсов связан с методами их изготовления: достижениями химии материалов и литографии, развитием вакуумной техники и технологии изготовления и обработки Si пластин, а также нанометрологией. Актуальность дальнейших исследований обусловлена необходимостью разработки и создания новых высокоразрешающих и эффективных элементов оптических и электронных приборов, в т.ч. для литографии на 6.Х нм, рентгеновского лазера на свободных электронах (РЛСЭ), резонансного неупругого рентгеновского рассеяния, астрофизики мягкого рентгеновского (МР) и экстремального ультрафиолетового (ЭУФ) диапазонов, рентгеновской микроскопии и др. Все более важным для коротковолновой оптики становится сравнение, в т.ч. *in situ*, измеренных на источниках синхротронного излучения и РЛСЭ значений интенсивности рассеяния с надежными расчетными данными, полученными на основе приближенных или точных численных методов. Не менее интересным является возможность решения обратной задачи рентгеновского рассеяния, т.е. синтеза требуемых структур с заданными выходными параметрами.

В силу малой длины волны рентгеновского излучение (РИ) и холодные нейтроны является мощнейшим инструментом для исследования морфологии и состава наноразмерных покрытий, поэтому методы рентгеновской рефлектометрии, рентгеновского флуоресцентного анализа и другие нашли широкое применение за последние десятилетия в науке и технике. Однако, теоретическое исследование взаимодействия РИ с конденсированным веществом, особенно с многослойными шероховатыми покрытиями является весьма сложной и не решенной до конца проблемой. В этой связи, работа Кожевникова И.В., посвященная разработке теории дифракции РИ от неоднородных слоистых сред и ее применения для моделирования тонких пленок, многослойных зеркал и ламеллярных многослойных дифракционных решеток с реалистическим профилями интерфейсов является, несомненно, **актуальной**.

Диссертация Кожевникова И.В. состоит из введения, трех глав, основных результатов и выводов, списка литературы из 225 наименований и списка публикаций

автора по теме диссертации из 63 наименований. Текст диссертации изложен на 356 страницах и содержит 168 рисунков и 11 таблиц. Цель и задачи работы, выполненной диссертантом, обоснованы во **введении**. В нем также изложены научная новизна работы, ее практическая ценность сформулированы положения, выносимые на защиту, а также отмечены личный вклад автора, апробация результатов и краткое содержание работы.

В **первой главе** диссертации рассматриваются особенности отражения РИ от шероховатых сред и, в первую очередь те из них, которые не наблюдаются в рассеянии видимого излучения. Демонстрируется, что теория возмущений, объясняющая все наблюдаемые особенности дифракции РИ от слабо шероховатых поверхностей и слоистых сред, является наилучшей теоретической основой для рентгеновских методов контроля шероховатостей, поскольку позволяет однозначно определить параметры шероховатостей (функцию спектральной плотности мощности – PSD) непосредственно из индикатрисы рассеяния, не используя никаких априорных предположений ни о виде корреляционной функции, ни о функции распределения высот шероховатостей. В отличие от всех известных подходов, где индикатриса рассеяния представляется в виде двойной суммы парциальных амплитуд рассеяния от каждой границы раздела, это суммирование проведено в явном виде и получены компактные формулы, описывающие индикатрису рентгеновского рассеяния в предположении справедливости линейной модели роста пленок. Полученные выражения моделируют все особенности рассеяния от многослойных интерференционных структур (МИС), наиболее интересной среди которых являются квази-брэгговские пики, обусловленные интерференцией волн, рассеянных от разных границ раздела с коррелированными шероховатостями. Показано, что для извлечения информации о ростовых параметрах многослойных структур необходимо производить измерения рассеяния на большие углы. Тем самым, **подтверждено первое защищаемое положение**.

На основе теории возмущений разработаны методики определения параметров шероховатости применительно к *in situ* рефлектометрии растущих или эродирующих поверхностей без каких-либо априорных предположений о модели роста/эрозии. Среди них наиболее важным представляется определение скэйлинговых экспонент из анализа асимптотического поведения PSD-функции в области высоких пространственных частот, зависимости среднеквадратичной высоты шероховатостей от времени напыления/травления и наблюдения коллапса (сжатия) ``перенормированных" PSD-функций в единую универсальную кривую, что иногда позволяет определить вид дифференциального уравнения, описывающего процесс роста/эрозии. На примере роста пленок Al_2O_3 и ионного травления кремниевой подложки продемонстрирована независимость скэйлинговых экспонент, т.е. уравнения роста или эрозии, от шероховатости исходной подложки. Таким образом, **обосновано второе защищаемое положение**.

Вторая глава посвящена разработке новых подходов к решению обратных задач рефлектометрии, а именно: реконструкции профиля диэлектрической проницаемости $\epsilon(z)$ из измеренной угловой зависимости коэффициента отражения и определению фазы комплексного амплитудного коэффициента отражения $r(t)$ по временным измерениям квадрата его модуля $R(t)$ и dR/dt . Единственное, что предполагается в подходе – это наличие особых точек (границ раздела) на профиле диэлектрической проницаемости, в которых или сама функция $\epsilon(z)$ (особая точка нулевого порядка), или ее n -ая производная испытывает скачкообразное изменение. Прежде всего, анализируя измеренную часть кривой отражения, оказывается возможным определить число особых точек на распределении $\epsilon(z)$, расстояния между ними и, более того, значения скачков диэлектрической проницаемости в особых точках, т.е. построить адекватную и достаточно подробную модель отражающей среды. После этого можно определить и асимптотическое поведение амплитудного коэффициента отражения (не только его модуля, но и фазы) в области больших углов скольжения. Если различны все расстояния между особыми точками и попарные произведения скачков диэлектрической проницаемости в особых точках, то число возможных решений обратной задачи равно четырем, причем два из них приводят к значениям $\epsilon(z)$, превышающим единицу, и могут быть сразу же отброшены. Решение, соответствующее реальности, может быть выбрано из оставшихся двух либо из общих физических соображений, либо на основе дополнительных экспериментов. Разработанный подход был успешно применен к исследованию внутренней структуры пленок различных материалов на кремниевых подложках, включая тонкую структуру границ раздела, образующихся из-за диффузии, химических реакций или имплантации, и адгезионного слоя на поверхности образцов. Дополнительным доказательством правильности найденных решений является практически идеальное соответствие профилей $\epsilon(z)$ для пленок различной толщины.

Кроме того, **во второй главе** разработан самосогласованный подход к исследованию структуры пленочных покрытий. Подход позволяет одновременно реконструировать профиль $\epsilon(z)$ по глубине и определить статистические параметры шероховатостей (PSD-функции), основываясь на угловой зависимости коэффициента отражения и набора индикатрис рентгеновского рассеяния, измеренных при разных углах скольжения зондирующего пучка. Подход основан на специально разработанной итерационной процедуре, так что параметры шероховатости, найденные на предыдущей итерации, принимаются во внимание при реконструкции профиля диэлектрической проницаемости на последующей итерации и, наоборот, найденный профиль $\epsilon(z)$ учитывается при определении PSD-функций исследуемого образца. Продемонстрирована быстрая сходимость итерационной процедуры: для исследованных гладких образцов две итерации оказались вполне достаточны. Подход существенным образом основан на измерениях интегрального коэффициента отражения вместо зеркального, что позволяет преодолеть проблему экстраполяции

измеренной PSD-функции в область малых пространственных частот и, тем самым, проблему неоднозначности определения среднеквадратичной высоты шероховатости. Разработанный самосогласованный подход был использован для сравнительных исследований структуры пленок вольфрама после их напыления, ионного травления и окисления. Также продемонстрирована возможность восстановления профилей концентраций химических элементов, составляющих образец, а не только профиля диэлектрической проницаемости на фиксированной длине волны. Подход основан на одновременном анализе набора кривых отражения, измеренных в зависимости от угла скольжения МР излучения при различных энергиях фотонов, лежащих между краями поглощения элементов. Следовательно, **подтверждено четвертое защищаемое положение.**

Во **второй главе** разработан новый подход к решению фазовой проблемы рентгеновской рефлектометрии. Подход требует измерения *in situ* коэффициента отражения от растущей слоистой структуры, так что как коэффициент отражения $R(t)$, так и его производная dR/dt известны в момент времени t . Этих двух чисел оказывается достаточно, чтобы определить комплексный амплитудный коэффициент отражения $r(t)$ в тот же момент времени, причем для определения фазы нет необходимости знать предисторию процесса роста. В отличие от подходов, рассмотренных в литературе, метод справедлив и для поглощающей среды. Показано (на примере растущей пленки вольфрама), что измерения *in situ* коэффициента отражения даже при фиксированном угле скольжения зондирующего пучка позволяют восстановить профиль плотности пленки, по крайней мере, в течение тех временных интервалов напыления, когда не происходит процессов имплантации или диффузии атомов. Это **обосновывает третье защищаемое положение.**

В **третьей главе** рассматривается отражение РИ от апериодических и ламеллярных многослойных структур. Выводится выражение для коэффициента отражения РИ от произвольной многослойной структуры с периодом, монотонно изменяющимся по глубине. Разработан новый подход к решению обратной задачи синтеза широкополосных многослойных зеркал рентгеновского диапазона, основанный на комбинации аналитического и численного расчетов. Задача синтеза состоит в определении последовательности толщин слоев, составляющих МИС, которая обеспечивает наперед заданную спектральную или угловую зависимость коэффициента отражения. Исходя из упрощенного выражения, получена аналитическая итерационная процедура, позволяющая определить необходимое распределение толщины слоев МИС по глубине, которое обеспечивает заданную спектральную зависимость коэффициента отражения $R(\lambda)$. Аналитическое решение проблемы используется как начальное приближение для прямой компьютерной оптимизации с использованием функции невязки стандартного вида, которая характеризует среднеквадратичное отклонение рассчитанного профиля коэффициента отражения от желаемого. Такой подход позволяет преодолеть проблему глобальной

минимизации, поскольку аналитическое решение оказывается очень хорошим начальным приближением, даже в случае сложного профиля кривой отражения. На основе полученных результатов рассматриваются особенности конструкций широкополосных зеркал для управления пучками СИ, ЭУФ литографии и зеркал Гёбеля для увеличения эффективности использования излучения точечных источников. В **третьей главе** также разработан общий подход для конструирования МИС, обеспечивающей максимальную интегральную эффективность отражения для произвольной функции источника. Подход основан на применении уравнения Эйлера-Лагранжа для нахождения экстремалей функционала и аналитическом уравнении для отражения рентгеновского излучения от широкополосной МИС. Получена аналитическая итерационная процедура, позволяющая определить распределение толщины слоев МИС по глубине. Показано, что численное уточнение конструкции МИС не имеет смысла, т.к. приводит к крайне незначительному увеличению эффективности за счет драматического усложнения распределения толщин слоев. В результате, **подтверждено пятое защищаемое положение.**

На основе метода связанных волн в **третьей главе** анализируется дифракция РИ от ламеллярных многослойных решеток. Создана компьютерная программа для численного решения системы уравнений. Программа применима для любого распределения диэлектрической проницаемости по глубине МИС, т.е. для периодических и аperiodических структур с резким или плавным изменением диэлектрической проницаемости на границах раздела соседних материалов, двухкомпонентных или многокомпонентных МИС, любого числа слоев МИС, а также для любого значения периодов МИС и ламеллярных решеток. Более того, программа применима для любой формы ламелл и учитывает наличие пассивирующего слоя на стенках ламелл. Идентифицирован одномодовый режим работы подобных решеток, когда падающая волна эффективно возбуждает единственную волну определенного порядка дифракции. Найдены условия существования этого режима и разработана простая аналитическая теория отражения и дифракции МР излучения от одномодовых ламеллярных решеток, результаты которой полностью совпадают с результатами точных расчетов. Показано, что кривая отражения МР излучения от одномодовой решетке такая же как от обычного многослойного зеркала, но с уменьшенной плотностью материалов, составляющих структуру. В результате пиковый коэффициент отражения от одномодовой решетки точно такой же как от обычного многослойного зеркала, а ширина брэгговского пика может быть сколь угодно мала. Проанализировано влияние различных технологических факторов на эффективность решетки, среди которых отличие формы ламелл от идеальной прямоугольной, включая наличие квази-периодических неоднородностей на боковых стенках ламелл, и наличие остатков пассивирующего слоя на стенках ламелл. Рассмотрено влияние конечного числа периодов ламеллярных решеток на их оптические характеристики. Разработанная теория была применена при практическом

изготовлении решеток и позволила количественно описать экспериментальные результаты исследования отражения и дифракции МР излучения от них. Таким образом, **обосновано шестое защищаемое положение.**

Результаты, полученные автором, являются, без сомнения, **новыми научными** знаниями не только в физике, но и на стыке нескольких отраслей знаний: материаловедения, микроэлектроники, химии. Кроме того, они обобщают и уточняют многие из известных ранее подходов. Однако, **вызывает недоумение** частое использование автором в тексте диссертации и автореферата термина «3D структуры» без соответствующего обоснования. Дело в том, что для теоретического анализа рассеяния рентгеновского излучения на неоднородных слоистых средах Кожевников И.В. решает, как максимум, двумерное скалярное уравнение Гельмгольца. Для сведения трехмерной электродинамической задачи к двумерной автор использует интегрирование индикатрисы рассеяния по азимутальному углу и соответствующие одномерные PSD функции, т.е. делается предположение об изотропии поверхности в плоскости роста, без обоснования его справедливости для рассматриваемых технологий и образцов. Известно, что далеко не все шероховатые поверхности изотропны, например, для решеточных структур или зеркал, полученных алмазным точением, шероховатость в двух перпендикулярных плоскостях может отличаться кардинально и, соответственно, отличаться индикатрисы рассеяния. Вакуумные технологии напыления и травления тонких пленок, с учетом шума источника и реальной геометрии осаждения/съема материала, также могут приводить к образованию не изотропных поверхностей, даже на изотропной подложке. В диссертации этот вопрос, к сожалению, не обсуждается и оценок, в каких случаях можно пренебречь кросс-корреляционными эффектами в плоскости роста и как они влияют на интенсивность рассеяния, не делается.

Достоверность теоретических (аналитических и численных) результатов диссертационной работы подтверждается многочисленными экспериментальными данными, представленными ее автором, а также сравнениями с известными для некоторых случаев аналитическими решениями, асимптотиками или точными расчетами. Автор диссертации широко известен своими выступлениями на многочисленных конференциях и симпозиумах в России и за рубежом, которые получили одобрение ведущими мировыми специалистами в затрагиваемых областях. Тем не менее, **необходимо отметить**, что метод связанных волн, который автор использует для точного определения и сравнения эффективности ламеллярных многослойных решеток не является строгим в случае решеток не идеального профиля и s поляризации, т.е. когда электрический вектор падающей волны поляризован в плоскости падения (Е. Popov. / E. Popov, M. Neviere, B. Gralak, G. Tayeb // J. Opt. Soc. Am. Vol. A19. 2002. P. 33).

Содержание диссертации и защищаемых положений **отражает результаты опубликованных работ** Кожевникова И.В. В ней имеется полное соответствие

поставленных целей и полученных результатов. Содержание диссертации в целом и ее отдельных глав обладают внутренним единством. Вначале каждой главы делается краткий экскурс по состоянию рассматриваемой области, очерчивается круг нерешенных задач на момент до получения автором описываемых в главе результатов. В конце глав приводятся научные выводы с рекомендациями по их практическому использованию. Опечатки и неточности в работе есть, но их не много, особенно учитывая размер работы и глубину проведенных автором исследований. К тому же, все они не носят принципиального характера. Количество используемых аббревиатур не слишком велико и они не затрудняют прочтение материала.

Все сделанные рецензентом замечания носят в большей степени характер пожеланий и не портят общего весьма благоприятного впечатления, которое производит диссертация Кожевникова И.В. в целом.

Диссертация Кожевникова И.В. является законченным научно-исследовательским трудом, выполненным автором самостоятельно или с соавторами, что в работе отмечено, на высоком научном уровне. В диссертационной работе приведены научные результаты, позволяющие квалифицировать их как решение задачи, имеющей существенное значение для физики. Название работы и ее содержание соответствует паспорту научной специальности. Полученные автором результаты достоверны, выводы и заключения обоснованы. Работа базируется на достаточном числе исходных данных, примеров и расчетов. Она написана доходчиво, грамотно и аккуратно оформлена. Автореферат полностью отражает содержание диссертации.

Диссертация Кожевникова И.В. безусловно является научно-квалификационной работой, в которой на основании выполненных автором исследований разработаны теоретические положения, совокупность которых можно квалифицировать как научное достижение. Диссертационная работа отвечает всем критериям Постановления «О порядке присуждения ученых степеней», а ее автор Кожевников Игорь Викторович заслуживает присуждения ученой степени доктора физико-математических наук по специальности 01.04.07 - Физика конденсированного состояния.

Официальный оппонент, д.ф.-м.н., г.н.с. СПб АУ – НОЦНТ РАН

Л.И. Горай

07.03.2014г.

Подпись официального оппонента заверяю:

Игорь Кожевников
Триггер по учебной работе
07.03.2014г.