

06

Использование связанных параметров в рентгенодифракционном анализе многослойных структур с учетом времени роста слоев

© П.А. Юнин,¹ Ю.Н. Дроздов,¹ М.Н. Дроздов,¹ А.В. Новиков,¹ Д.В. Юрасов,¹ Н.Д. Захаров,² С.А. Королев¹

¹ Институт физики микроструктур РАН,
603950 Нижний Новгород, Россия

² Max-Planck-Institut für Mikrostrukturphysik, Weinberg 2,
D-06120 Halle, Germany
e-mail: yunin@ipmras.ru

(Поступило в Редакцию 17 апреля 2013 г.)

Обсужден новый подход к анализу рентгенодифракционных спектров многослойных структур. Особенностью подхода является использование информации о временах роста отдельных слоев. При этом по сравнению с обычной процедурой анализа уменьшается число варьируемых параметров. Повышаются стабильность и скорость сходимости процедуры подгонки вычисленного спектра к экспериментальному даже в случае большого числа слоев и малоинформативного эксперимента. Подход реализован за счет наложения связей на параметры модели при расчете спектра в программе Bruker DIFFRAC.Leptos. На примере многослойной SiGe/Si-структуры проведено сравнение нового подхода с обычной процедурой. Корректность нового подхода подтверждена сравнением с данными вторично-ионной масс-спектрометрии и просвечивающей электронной микроскопии. Обсуждены преимущества и ограничения предлагаемого метода.

Введение

Рентгенодифракционный (РД) анализ является одним из наиболее информативных, точных и широко распространенных методов диагностики многослойных полупроводниковых гетероструктур [1]. В частности, одной из основных задач для РД является определение составов и толщин отдельных слоев многослойных гетероэпитаксиальных псевдоморфных структур. Интерпретация данных РД эксперимента осложнена из-за принципиальной невозможности непосредственного решения обратной задачи вследствие потери информации о фазе рассеянного излучения при его регистрации. Поэтому обычная процедура анализа РД-спектра состоит в следующем [1,2]. Сначала задается модель многослойной структуры в виде набора чередующихся слоев с определенным составом и толщиной. Для этой модели по рекуррентной формуле динамической теории дифракции рентгеновских лучей рассчитывается РД-спектр вблизи заданного брэгговского отражения. Затем рассчитанный спектр подгоняется под измеренный в эксперименте путем варьирования параметров модели. Для минимизации невязки между рассчитанным и измеренным спектрами используются специальные алгоритмы поиска минимума в многомерном пространстве параметров модели [2].

В случае большого числа слоев в структуре требуется определять сразу много параметров, что может осложняться малой информативностью измеренного РД-спектра. Возникают трудности со сходимостью автоматизированной процедуры к правильному решению, глобальному минимуму функционала невязки. Найденное решение становится неустойчивым из-за корреляции различных параметров структуры. В зависимости от начальных значений параметров модели и метода

минимизации алгоритм может предлагать различные решения, не достигая глобального минимума.

Для повышения скорости и устойчивости сходимости алгоритма в настоящей работе предлагается уменьшать число варьируемых параметров, используя дополнительную информацию о структуре, а именно времена роста отдельных слоев. Фактически при этом скрытыми независимыми параметрами становятся потоки осаждаемых веществ, которые в ростовом реакторе задаются каким-либо регулирующим устройством и поддерживаются постоянными во время роста структуры. Ранее возможность использования подобного подхода была продемонстрирована нами в работе [3], однако для этого приходилось создавать свою программу вычисления спектров и их подгонки под эксперимент. Вместе с тем в комплекте современных дифрактометров поставляются хорошо отработанные программы анализа спектров. В настоящей работе предлагается путь использования этих универсальных программ для уточнения потоков за счет наложения специального типа связей на параметры модели, что открывает возможность для широкого использования нового подхода к анализу РД-спектров. Кроме того, предлагаемый подход обобщен на непериодические структуры с произвольным числом слоев. Использована коммерческая программа обработки РД-спектров высокого разрешения DIFFRAC.Leptos 7 из комплекта дифрактометра D8 Discover фирмы Bruker [2].

Описание алгоритма наложения связей

Рассмотрим предлагаемый метод анализа на примере многослойной структуры с чередующимися слоями SiGe/Si. Для современной установки эпитаксиального роста в общем случае задаются потоки f_{Si} , f_{Ge} и

времена роста отдельных слоев. Под потоками мы будем понимать скорости осаждения отдельных веществ и выражать их в nm/s. При одновременном осаждении компонент твердого раствора $\text{Ge}_x\text{Si}_{1-x}$ и выполнении закона Вегарда эти скорости аддитивно складываются с достаточно хорошей точностью [4]. Величины f_{Si} и f_{Ge} регулируются в установке внешним параметром и поддерживаются стабильными с помощью регуляторов потоков. Пусть в процессе роста поток f_{Si} включен постоянно, а поток f_{Ge} перекрывается заслонкой на время роста слоя чистого Si. В ростовом процессе заданы времена роста k -го слоя t_{Si}^k и t_{SiGe}^k . Тогда толщина и состав любого слоя Si и SiGe соответственно

$$\begin{aligned} h_{\text{Si}}^k &= t_{\text{Si}}^k f_{\text{Si}}, \\ h_{\text{SiGe}}^k &= t_{\text{SiGe}}^k (f_{\text{Si}} + f_{\text{Ge}}), \\ x &= f_{\text{Ge}} / (f_{\text{Si}} + f_{\text{Ge}}). \end{aligned} \quad (1)$$

Если времена роста считать известными, то независимо от числа слоев в структуре неизвестными параметрами будут только две величины потоков f_{Si} и f_{Ge} , которые можно уточнять непосредственно, как в [3], либо используя возможности наложения связей на параметры слоев в универсальной программе. Тогда потоки будут неявными параметрами, а варьируются параметры h для двух произвольно выбранных опорных слоев Si^{ref} и SiGe^{ref} . Потоки с ними связаны

$$\begin{aligned} f_{\text{Si}} &= h_{\text{Si}}^{\text{ref}} / t_{\text{Si}}^{\text{ref}}, \\ f_{\text{Ge}} &= h_{\text{SiGe}}^{\text{ref}} / t_{\text{SiGe}}^{\text{ref}} - h_{\text{Si}}^{\text{ref}} / t_{\text{Si}}^{\text{ref}}. \end{aligned} \quad (2)$$

Толщина и состав произвольного k -го слоя будут выражаться из (1), (2) через толщины двух опорных слоев и известные времена роста следующим простым образом:

$$\begin{aligned} h_{\text{Si}}^k &= t_{\text{Si}}^k (h_{\text{Si}}^{\text{ref}} / t_{\text{Si}}^{\text{ref}}), \\ h_{\text{SiGe}}^k &= t_{\text{SiGe}}^k (h_{\text{SiGe}}^{\text{ref}} / t_{\text{SiGe}}^{\text{ref}}), \\ x_{\text{SiGe}}^k &= (h_{\text{SiGe}}^{\text{ref}} / t_{\text{SiGe}}^{\text{ref}} - h_{\text{Si}}^{\text{ref}} / t_{\text{Si}}^{\text{ref}}) / (h_{\text{SiGe}}^{\text{ref}} / t_{\text{SiGe}}^{\text{ref}}). \end{aligned} \quad (3)$$

Современные коммерческие программы анализа РД-спектров позволяют наложить такого типа связи на параметры модели, что и дало возможность отказаться от использования специализированной программы уточнения потоков. Реализация изложенного выше алгоритма на практике выражается в использовании (3) при задании параметров модели. Следует отметить, что аналогичный подход можно расширить на анализ структур с различным составом слоев и меняющимися в одном ростовом процессе величинами потоков. При этом в приближении линейной зависимости величины потока от некоторого внешнего регулирующего параметра количество необходимых для уточнения по РД-спектру параметров структуры не изменится. Учет более сложных зависимостей потоков от параметров роста потребует варьирования большего числа параметров модели. Подобный подход будет целесообразным, пока число уточняемых параметров меньше полного набора параметров структуры.

Результаты и обсуждение

Продemonстрируем работу предложенного алгоритма на примере анализа восьмислойной структуры резонансно-туннельного диода с чередующимися Si- и SiGe-слоями. Образец выращен в установке молекулярно-пучковой эпитаксии Riber SIVA-21. Для испарения Si и Ge использовались электронно-лучевые испарители. Контроль и управление потоками Si и Ge осуществлялся с помощью квадрупольного масс-спектрометра, включенного в цепь обратной связи электронно-лучевых испарителей. Рост шел по заранее заданной программе, в соответствии с временами роста слоев, указанными в таблице. Управление заслонками осуществлялось в автоматическом режиме.

РД-эксперимент выполнен на дифрактометре Bruker D8 Discover на $\text{CuK}\alpha_1$ -излучении с параболическим фо-

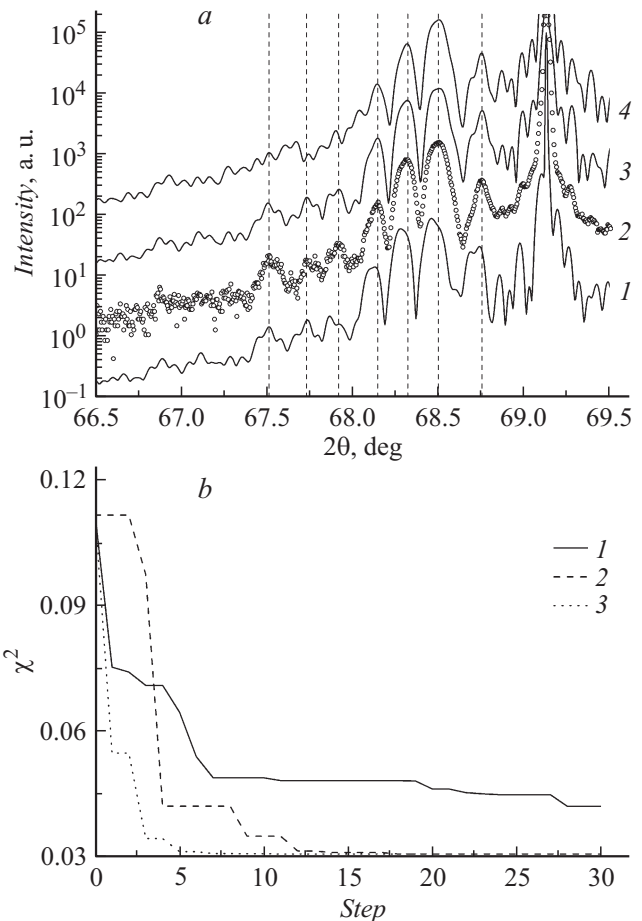


Рис. 1. Результаты РД-анализа тестовой структуры; *a* — РД-спектры: 1 — рассчитанный по ростовой спецификации, 2 — измеренный экспериментально, 3 — соответствующий подгонке с учетом связей (модель I), 4 — соответствующий подгонке без учета связей (модель II); *b* — значение функционала невязки в зависимости от шага уточнения: 1 — генетический алгоритм без учета связей, 2 — генетический алгоритм с учетом связей, 3 — алгоритм Левенберга-Марквардта с учетом связей.

Параметры исследуемой структуры, заданные в ростовой спецификации и определенные различными методами: анализ РД-данных с использованием связей и без связей, ВИМС, ПЭМ поперечного среза

N слоя от поверхности	Ростовая спецификация			Модель I РД со связями		Модель II РД без связей		ВИМС		ПЭМ
	t, s	h, nm	$x Ge, \%$	h, nm	$x Ge, \%$	h, nm	$x Ge, \%$	h, nm	$x Ge, \%$	
1	1176	100	0	98.8	0	97.0	0	100.1	0	98.6
2	320	32	15	31.4	14.4	26.3	14.9	31.4	14	31.8
3	43.5	3.7	0	3.7	0	2.9	0	3.0	0	3.6
4	21	2.1	15	2.1	14.4	2.5	18	2.5	14.4	2.8
5	43.5	3.7	0	3.7	0	3.8	0	3.3	0	3.1
6	90	9	15	8.8	14.4	8.7	14.5	9.2	14.4	8.9
7	43.5	3.7	0	3.7	0	3.8	0	3.1	0	3.6
8	320	32	15	31.4	14.4	38.1	13.4	30.7	14.2	31.6

кусирующим зеркалом Гебеля и прорезным монохроматором двукратного отражения Ge(220). На рис. 1, *a* точками показан экспериментальный ($2\theta-\omega$)-скан в окрестности Si(004). Ожидаемые параметры структуры, указанные в ростовой спецификации, приведены в таблице вместе с временами роста слоев. Смоделированный РД-спектр, соответствующий параметрам ростовой спецификации, приведен на рис. 1, *a*, линия 1. Видны заметные расхождения с измеренным спектром, что свидетельствует о некотором отличии реально выращенной структуры от модели, заданной при росте. Далее на параметры модели, используемой для расчета РД-спектра, накладывались связи (3) и запускался процесс подгонки толщин двух слоев — верхнего слоя чистого Si (h_{Si}^{ref}) и следующего за ним слоя SiGe (h_{SiGe}^{ref}). При этом в соответствии со связями (3) изменялись параметры толщины и состава остальных слоев структуры. Параметры модели, полученной при подгонке рассчитанного с учетом связей спектра под экспериментальный, приведены в таблице. Величины потоков, которые фактически и варьировались, оказались равны $f_{Si} = 0.084 nm/s$, $f_{Ge} = 0.014 nm/s$. Сам рассчитанный таким образом спектр показан на рис. 1, *a* линией 3. Наблюдается хорошее соответствие с экспериментальным спектром. Для сравнения была также проведена обычная процедура подгонки без наложения связей на параметры модели. Подгонялось 12 независимых параметров — толщины восьми слоев и состав для четырех слоев SiGe. Для подгонки использовался генетический алгоритм поиска глобального минимума в пространстве параметров модели [2]. Результаты определения параметров структуры приведены в таблице, а РД-спектр, полученный для найденной модели на последнем шаге процедуры подгонки, показан на рис. 1, *a* линией 4. Видно, что использование связанных параметров уже визуально дало лучшее согласование между рассчитанным и измеренным РД-спектрами. Это означает, что в данном случае не срабатывает алгоритм поиска глобального минимума. Причиной могут быть особенности структуры или процедуры поиска. Новый алгоритм уточнения потоков оказывается в таких случаях более надежным

на этапе выхода в область глобального минимума. Исследованная структура представляет собой резонансно-туннельный диод и имеет сравнительно небольшое число слоев в отличие, например, от структур квантово-каскадных лазеров, где периодически повторяется набор из нескольких десятков слоев. Применение обычных процедур анализа РД-эксперимента становится в последнем случае некорректным, а уточнение потоков продолжает работать, поскольку варьируется все тот же небольшой набор параметров — потоки осаждаемых веществ.

Для количественной характеристики степени соответствия смоделированного РД-спектра эксперименту в программе [2] используется критерий невязки χ^2 :

$$\chi^2 = 1/N \sum (\log(I_{exp}) - \log(I_{sim}))^2, \quad (4)$$

где проводится суммирование по всем N точкам экспериментального и смоделированного спектров, I_{exp} — экспериментальные интенсивности, I_{sim} — интенсивности на рассчитанном спектре. Изменение величины χ^2 во время процедуры подгонки позволяет сравнить различные процедуры по скорости сходимости. На рис. 1, *b* приведены графики зависимости величины χ^2 от номера шага. Сплошная линия 1 соответствует использованию подхода без наложения связей на параметры модели. Штриховой линией 2 показана работа генетического алгоритма с теми же настройками, но для модели с использованием связанных параметров. Уменьшение числа варьируемых параметров до двух позволило добиться лучшего соответствия между расчетом и экспериментом за меньшее число шагов уточнения. Стоит отметить, что при подгонке только двух параметров разумнее отказаться от использования генетического алгоритма и применять локальные методы поиска минимума. Пунктирной линией 3 на рис. 1, *b* показано изменение значения невязки χ^2 для алгоритма минимизации Левенберга–Марквардта [2]. Видно, что использование локального метода поиска минимума вместо нелокального в случае наложения связей на варьируемые параметры оправдано и приводит к гораздо более быстрой сходимости к той же модели I и до тех же значений χ^2 .

Поскольку появилась неоднозначность решения, то для проверки результатов РД-анализа были проведены исследования данной структуры методами прямого послойного анализа: вторично-ионной масс-спектрометрии (ВИМС) и просвечивающей электронной микроскопии (ПЭМ) поперечного среза. На рис. 2 приведены данные послойного ВИМС-анализа исследуемой структуры. Эксперимент по послойному анализу проводился на времяпролетном масс-спектрометре вторичных ионов TOF-SIMS.5. Использовался режим распыления пучком ионов Cs^+ с энергией 1 keV, анализ проводился ионами Bi^+ с энергией 25 keV. Экспериментальный профиль ВИМС обработан в соответствии с описанными в [5,6] методиками пересчета времени травления в глубину и относительной интенсивности выхода вторичных ионов $^{74}\text{Ge}^- / ^{30}\text{Si}^-$ в абсолютную величину x состава твердого раствора. Разрешение по глубине в методе ВИМС недостаточно для количественного анализа слоев с толщиной менее 10 nm непосредственно по измеренному профилю, поэтому выполнен учет экспериментального искажения истинного профиля в соответствии с измеренными ранее параметрами функции разрешения TOF-SIMS.5 [6]. Использована модель однородных слоев, варьированием толщин и составов слоев в структуре достигалось соответствие смоделированного профиля с экспериментом. На рис. 2 точками показан экспериментальный профиль ВИМС после пересчета интенсивности выхода вторичных ионов в состав твердого раствора и времени травления в глубину. Сплошной линией показано распределение Ge по глубине, отвечающее наилучшему согласованию между рассчитанным профилем ВИМС (показан на рис. 2 штриховой линией) и экспериментом. Параметры модели приведены в таблице.

Также в таблице приведены толщины слоев, определенные по ПЭМ-изображению среза структуры, приве-

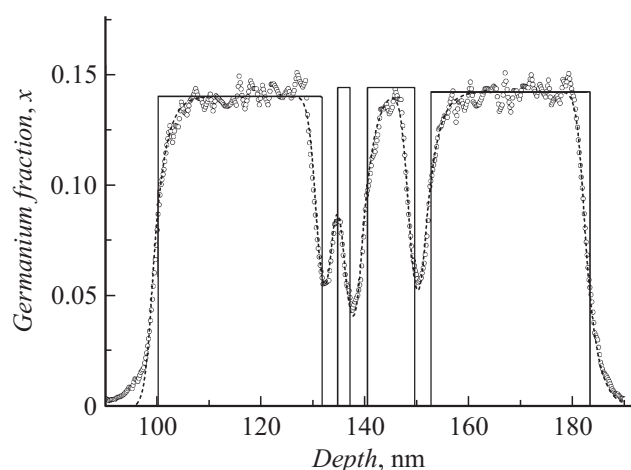


Рис. 2. Результаты послойного ВИМС-анализа тестовой структуры. Точки — экспериментально измеренный профиль, штриховая линия — модель истинного распределения Ge по глубине, пунктирная линия — расчет экспериментального профиля по модели истинного распределения Ge по глубине с учетом функции разрешения.

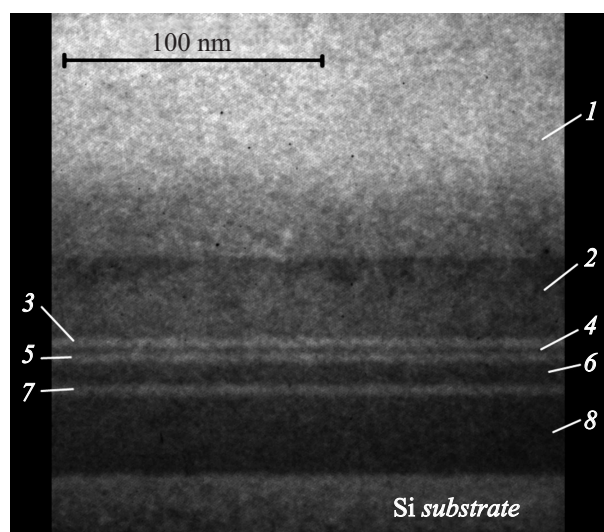


Рис. 3. ПЭМ-изображение среза исследуемой структуры. Цифрами отмечен номер слоя в соответствии с таблицей.

денному на рис. 3. Эксперимент проводился на электронном микроскопе Philips CM20 с ускоряющим напряжением 200 kV. Из таблицы видно, что основные отличия моделей I и II состоят в разной толщине, полученной для слоев 1 и 8, и разной концентрации Ge в слое 4. Толщины, измеренные по изображению ПЭМ, ближе к параметрам модели I, найденной уточнением потоков. Толщины и концентрации, восстановленные по данным ВИМС, также подтверждают модель I. Сравнение результатов разных подходов к анализу РД-эксперимента с данными измерений независимыми методами показывает, что использование предложенного подхода с наложением связей приводит к корректным результатам и обеспечивает хорошее соответствие с результатами ВИМС и ПЭМ в среднем в пределах 0.5 nm для толщин и 0.5% для составов слоев.

С другой стороны, необходимо указать на ограничения предлагаемого алгоритма. Усиление его возможностей основано на более „жесткой“ модели: предполагается, что слои растут однородными по составу, а их толщина пропорциональна времени роста. Применение его возможно только в случае стабильной работы регуляторов потока в установке и возможности задания программы, точно контролирующей времена роста отдельных слоев. При выполнении этих условий применение предложенного подхода оказывается очень удобным. В нашей практике описанный подход регулярно используется для калибровки потоков осаждения веществ в установке молекулярно-лучевой эпитаксии Riber SIVA-21. К ограничениям общего характера для всех методов подгонки вычисленного РД-спектра к экспериментальному относится случай релаксированных структур, где длина когерентности решетки меньше толщины структуры и вычисления по динамической теории становятся некорректными.

Заключение

Таким образом, в настоящей работе описан подход к анализу РД-спектров для многослойных структур с использованием специальных связей между параметрами. Наложение связей происходит с учетом информации о временах роста отдельных слоев в структуре. Использование связей целесообразно при калибровке регуляторов потоков в установках эпитаксиального роста, а также в случае сложных многослойных структур и малоинформативных экспериментальных данных. Предложенный подход позволяет уменьшать число варьируемых параметров, что приводит к ускорению и повышению стабильности процедуры подгонки рассчитанного спектра к экспериментальному. На примере 8-слойной структуры показаны преимущества использования предложенного подхода. Корректность найденного решения подтверждена сравнением с результатами измерений независимыми методами прямого послойного анализа ВИМС и ПЭМ.

Работа поддержана РФФИ, проект № 12-02-00548, программами президиума РАН и Министерством образования и науки Российской Федерации, соглашение 14.132.21.1713. Исследования выполнены с использованием оборудования ЦКП ИФМ РАН.

Список литературы

- [1] *Fewster P.F.* X-Ray scattering from semiconductors. London: Imperial College Press, 2000. 287 p.
- [2] *Diffra. Leptos 7. User Manual.* Karlsruhe: Bruker AXS GmbH, 2009.
- [3] *Дроздов Ю.Н., Новиков А.В., Юрасов Д.В., Юнин П.А.* // Поверхность. РСНИ. 2012. № 6. С. 36.
- [4] *Herman M.A., Sitter H.* Molecular beam epitaxy. 2nd Edition. Berlin–NY: Springer-Verlag, 1996. 453 p.
- [5] *Дроздов М.Н., Дроздов Ю.Н., Лобанов Д.Н., Новиков А.В., Юрасов Д.В.* // Поверхность. РСНИ. 2011. № 6. С. 93.
- [6] *Дроздов Ю.Н., Дроздов М.Н., Новиков А.В., Юнин П.А., Юрасов Д.В.* // Поверхность. РСНИ. 2012. № 7. С. 26.