

03

Методика определения коэффициента отражения в скользящем падении при использовании одноканальной схемы измерения

© П.С. Анциферов¹, Л.А. Дорохин¹, В.М. Макарова^{1,2}

¹ Институт спектроскопии РАН,
108840 Троицк, Москва, Россия

² Национальный исследовательский университет „Высшая школа экономики“,
101000 Москва, Россия

e-mail: ants@isan.troitsk.ru

Поступила в редакцию 13.04.2023 г.

В окончательной редакции 13.04.2023 г.

Принята к публикации 12.05.2023 г.

Измерение коэффициента отражения в скользящем падении является одним из основных методов для определения оптических констант материалов в диапазоне экстремального ультрафиолета. В настоящей работе описывается одноканальный метод такого измерения, в котором падающее и отраженное излучение, диспергированное в спектрометре скользящего падения, регистрируется одновременно при помощи CCD-матрицы. Предлагается алгоритм обработки спектрограмм, который основан на построении функции спектральной модуляции сигнала в спектре. Такой подход позволяет исключить влияние непрерывного спектрального фона на измеряемую величину коэффициента отражения. Разработанная методика была применена для обработки результатов эксперимента по измерению коэффициента отражения кремния при угле скольжения 5° в спектральном диапазоне 8–25 нм. В качестве спектрального прибора использовался спектрометр Quasi-Flat Field, источник излучения — быстрый капиллярный разряд.

Ключевые слова: экстремальный ультрафиолет, скользящее падение, коэффициент отражения, капиллярный разряд.

DOI: 10.61011/OS.2023.08.56298.4846-23

Введение

Экспериментальная работа в диапазоне экстремального ультрафиолета $\lambda \sim 10$ нм (ЭУФ) связана с рядом специфических проблем. Основные трудности заключаются в сильном поглощении веществом такого излучения и низком значении коэффициента отражения при нормальном падении. Однако практические приложения в нанолитографии [1] обуславливают постоянный рост интереса к этому диапазону. Для разработки оптических элементов в ЭУФ диапазоне необходима информация об оптических свойствах материалов. Одним из основных методов получения такой информации является измерение коэффициента отражения в скользящем падении.

В настоящее время наиболее точная методика определения коэффициента отражения основана на применении рефлектометра с использованием синхротронного излучения в качестве источника ЭУФ. Выбор такого источника связан с высокой стабильностью и воспроизводимостью, что обеспечивает точность измерения лучше 1%. Так, коллективом центра им. Гельмгольца в Берлине для синхротрона BESSY-II был разработан рефлектометрический узел [2] для исследования свойств нанооптических элементов в УФ и ЭУФ диапазонах. Дополнительные возможности BESSY-II рассмотрены в работе Берлинского Физико-технического института [3]. Аналогичная установка [4] была реализована на калифорнийском синхротронном источнике излучения

ALS. В качестве примера использования спектральной и угловой зависимостей коэффициента отражения для определения оптических констант материалов можно привести работу [5].

Однако практические потребности привели также к разработке методик измерения коэффициента отражения с использованием компактных лабораторных источников излучения. В работе [6] измерение отражения тонких пленок проводилось с применением лабораторного газоразрядного источника ЭУФ излучения. В работе [7] коэффициент отражения образца также определялся с применением газового пинча в качестве источника излучения. В Институте физики микроструктур РАН был разработан рефлектометр с источником на основе лазерной плазмы [8,9], который использовался для тестирования в широком диапазоне углов падения оптических элементов с многослойными покрытиями.

Использование CCD-матриц для регистрации ЭУФ излучения позволяет реализовать простую одноканальную схему измерения коэффициента отражения в скользящем падении [10]. Вместо традиционной монохроматизации излучения с непрерывным (квазинепрерывным) спектром здесь одновременно регистрируется линейчатый спектр прошедшего и отраженного от образца излучения (рис. 1), для чего изучаемый образец помещается внутри спектрометра скользящего падения. Измеряя коэффициент отражения на различных спектральных линиях, можно получать его спектральную зависимость.

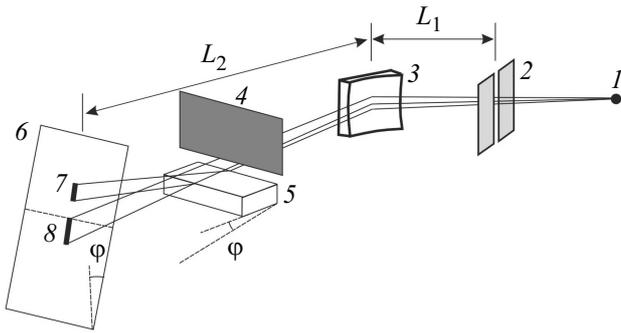


Рис. 1. Схема одноканальной методики измерения коэффициента отражения в скользящем падении. 1 — источник ЭУФ излучения, 2 — входная щель, 3 — сферическая дифракционная решетка, 4 — ножевая диафрагма, 5 — образец, 6 — плоскость регистрации, 7 — отраженная часть излучения, 8 — прошедшая часть излучения.

Если использовать в качестве измеряемой величины не полную интенсивность в максимуме спектральных линий, а разность между ней и регистрируемой интенсивностью в определенной точке у основания линии, то можно эффективно избавиться от всех непрерывных по спектру вкладов, включая вклады от высоких порядков дифракции. В настоящей работе излагается методика обработки спектрограмм прошедшего и отраженного излучения, в которой используется построение функции спектральной модуляции для каждой линии. Такая методика позволяет наиболее полным образом извлекать информацию из экспериментальных спектрограмм и достичь точности измерения коэффициента отражения порядка 1%. Методика применена для обработки результатов эксперимента по измерению коэффициента отражения от кремниевого образца.

Эксперимент

В работе представлены результаты измерений коэффициента отражения от кремниевого образца при угле скольжения 5° . Общая схема измерений описана в [10] и показана на рис. 1. В используемом спектрометре скользящего падения применена схема Quasi-Flat Field [11]. В этой схеме поверхность фокусировки спектральных линий нормальна к лучу зрения за счет смещения входной щели с окружности Роуланда. В спектрометре использована сферическая дифракционная решетка с радиусом кривизны $R = 1$ м, плотностью штрихов 1200 grooves/mm и входным углом скольжения 3° , размер входной щели $20 \mu\text{m}$. Согласно [11], расстояние от входной щели до центра решетки составляет $L_1 = 22$ мм, от центра решетки до плоскости регистрации — $L_2 = 296$ мм. Такая величина L_2 достаточна для размещения отражающего образца с размерами порядка нескольких сантиметров. В качестве источника излучения использован быстрый капиллярный разряд [12],

рабочий газ — аргон при давлении 80 Па. Максимальный ток разряда 40–50 кА достаточен для возбуждения спектральных линий ионов аргона вплоть до Ar IX. Пример рабочего спектра показан на рис. 2. Линии идентифицированы согласно данным [13]. Для регистрации спектров применялась CCD-камера Greateyes GE 2048 512 В. Рабочий размер матрицы 27.6×6.9 мм, размер пикселя $13.5 \times 13.5 \mu\text{m}$. Фрагмент спектрограммы излучения источника приведен на рис. 3. Для того чтобы одновременно зарегистрировать прямое и отраженное излучение, камера ориентировалась длинной стороной матрицы перпендикулярно направлению дисперсии (рис. 3). При этом одновременно регистрируемый диапазон длин волн сужался, и для исследования коэффициента отражения во всем рабочем спектральном диапазоне (8–25 нм) камера перемещалась вдоль направления дисперсии.

На рис. 3,а изображение соответствует спектру излучения без образца и без ножевой диафрагмы внутри спектрометра (рис. 1), на рис. 3,б — с образцом и с диафрагмой. При помещении образца прошедшему излучению $A'B'$ соответствует участок AB , участок $D'C'$ отраженного излучения соответствует участку CD на спектрограмме без образца. Для сравнения прошедшего и отраженного излучения использовались участки спектрограммы, отмеченные на рис. 3 номерами 1' и 2'.

Методика измерений

При помещении в спектрометр образца во время проведения эксперимента матрица регистрирует интегральные по времени спектры отраженного и прошедшего излучения. Для каждой линии спектральный профиль интенсивности (I) складывается из собственно спектральной линии (S) и непрерывного фона (B) (рис. 4). Фоновое излучение включает в себя темновой ток детектора, рассеянное излучение и непрерывные вклады первого и старших порядков дифракции. В силу

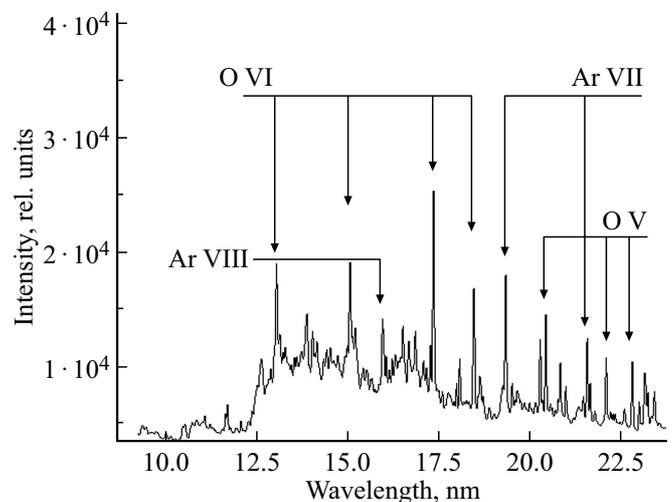


Рис. 2. Пример ЭУФ спектрограммы источника. Отмеченные линии идентифицированы согласно [13].

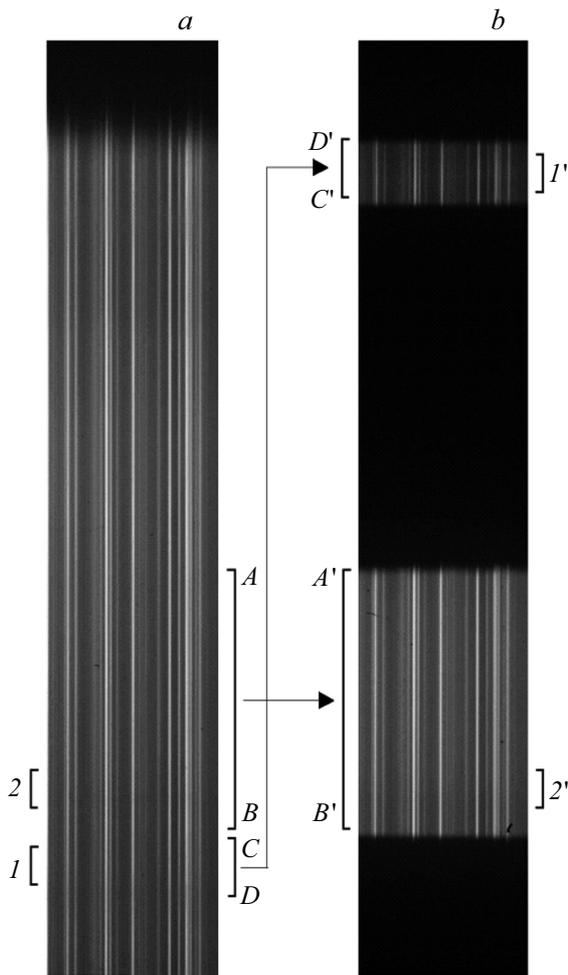


Рис. 3. Изображение спектральных линий, полученных при помощи CCD-матрицы, в диапазоне 20–23 nm: *a* — без образца и без ножевой диафрагмы внутри спектрометра, *b* — с образцом и с диафрагмой.

различной величины коэффициента отражения для излучения разных порядков дифракции уровень фоновой интенсивности будет давать непропорциональный вклад в интенсивность прошедшего и отраженного излучения, что является основной трудностью обработки спектрограмм. Возможности контролировать фоновое излучение в используемой схеме нет, поэтому для определения коэффициента отражения для каждой спектральной линии из регистрируемой интенсивности нужно вычесть фоновый вклад.

Данную проблему предлагается решить, используя функцию спектральной модуляции (*SM*). Для ее построения необходимо взять разность максимального значения профиля интенсивности и остальных точек профиля, т. е.

$$SM(\lambda) = I(\lambda_0) - I(\lambda), \tag{1}$$

где λ — спектральная координата, λ_0 — положение максимума. Вид функции спектральной модуляции для

отраженного (SM_r) и прошедшего (SM_d) излучения представлен на рис. 4.

Рассмотрим применение функции спектральной модуляции для определения коэффициента отражения. Считаем, что на ширине спектральной линии фон меняется слабо, т. е. $B = \text{const}$. Тогда профиль интенсивности имеет вид

$$I_r(\lambda) = S_r(\lambda) + B_r, \quad I_d(\lambda) = S_d(\lambda) + B_d,$$

где d, r относятся к прошедшему и отраженному излучению соответственно. Отсюда вытекает, что

$$SM_r(\lambda) = S_r(\lambda_0) - S_r(\lambda), \quad SM_d(\lambda) = S_d(\lambda_0) - S_d(\lambda). \tag{2}$$

Пусть R — коэффициент отражения для данной спектральной линии. Тогда, согласно (2), функции спектральной модуляции отраженного и прошедшего излучения пропорциональны друг другу с коэффициентом пропорциональности R :

$$SM_r(\lambda) = R SM_d(\lambda).$$

На основе вышеизложенных соображений был разработан алгоритм, позволяющий определять коэффициент отражения по экспериментальным спектрам. На рис. 5, 6 показан пример обработки спектральной линии 22.7 nm (ион $OV\ 2p^2 - 2p(^2P^0)3s$). Особенность работы с реальным экспериментальным спектром заключается в том, что профиль интенсивности состоит из дискретных значений (рис. 5, *a*), которые соответствуют пикселям CCD-матрицы. Спектральные координаты измеренных точек на спектрограммах отраженного и прямого излучения не совпадают друг с другом вследствие того, что строки CCD-матрицы не точно перпендикулярны направлению дисперсии. В связи с этим в предложенном алгоритме используются дополнительные шаги, такие как проведение аппроксимационной кривой для определения максимума спектральной линии для отраженного и прошедшего излучения (рис. 5, *b, c*) и интерполяция точек экспериментальных значений интенсивности (рис. 6, *a*).

1. Определение максимума спектральной линии

Максимальное значение интенсивности из дискретного набора экспериментальных точек может не совпадать с реальным максимумом профиля спектральной линии. Для определения максимума через несколько точек с наибольшим значением интенсивности методом наименьших квадратов проводится кривая третьего порядка. Считаем, что для учета возможной асимметрии профиля интенсивности достаточно полинома третьей степени. В качестве координаты соответствующей λ_0 и максимального значения интенсивности спектральной линии $I_{r,d}(\lambda_0)$ выбираются координаты вершины аппроксимационной кривой (рис. 5, *b, c*).

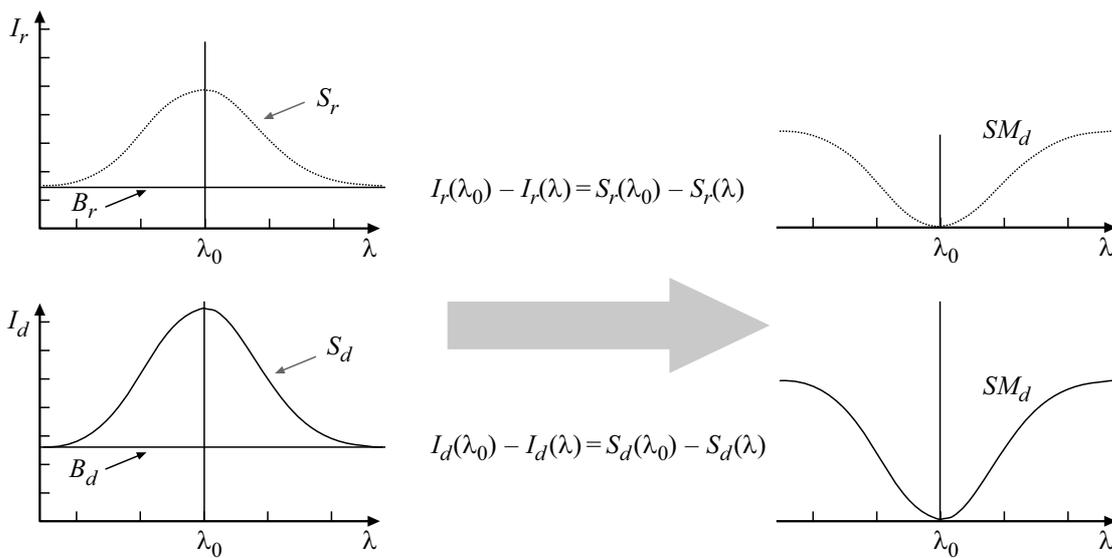


Рис. 4. Схема построения функции спектральной модуляции.

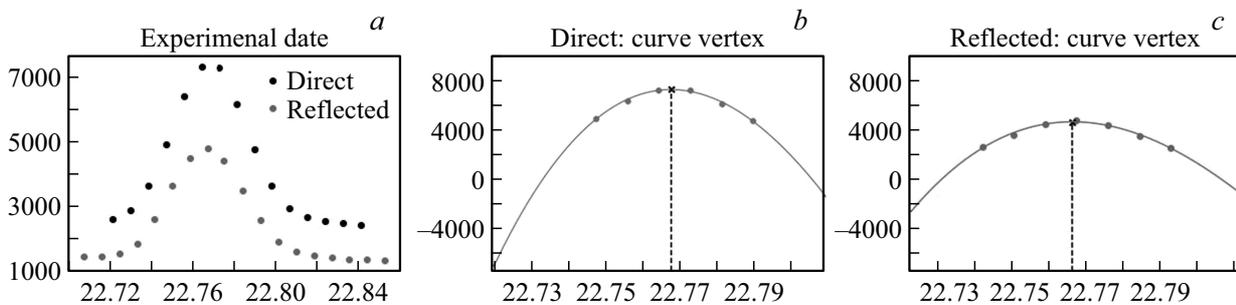


Рис. 5. Этап 1 обработки спектральной линии 22.7 nm. *a* — экспериментальные значения; *b, c* — построение аппроксимационной кривой 3-го порядка.

Для установления соответствия между спектральными профилями прямого и отраженного излучения координаты отдельных спектральных точек отсчитываются от положений максимумов спектральных линий (рис. 6).

2. Интерполяция спектрального профиля линии

Координаты спектральных точек отраженного и прошедшего излучения не совпадают. Поэтому для сравнения интенсивностей спектров отраженного и прошедшего излучения в точках с одной и той же длиной волны необходимо провести интерполяцию точек экспериментальных спектров. Для этого строятся сплайны, при помощи которых к точкам спектра отраженного излучения добавляются интенсивности в точках, соответствующих спектру прошедшего излучения, и наоборот (рис. 6, *a*).

3. Построение функции спектральной модуляции

Следуя (1), строим функцию спектральной модуляции: каждой точке графика интенсивности (с учетом интерполированных значений, рис. 6, *a*) присваиваем значение разности величины максимума спектральной

линии и значения интенсивности в точке. Вид графика спектральной модуляции показан на рис. 6, *b*.

4. Определение коэффициента отражения

Методом наименьших квадратов подбираем коэффициент отражения *R*:

$$\sum_i (R SM_d^i - SM_r^i)^2 \rightarrow \min. \tag{3}$$

Оптимальное значение *R*, согласно (3), принимается за искомый коэффициент отражения (рис. 6, *c*).

Результаты и обсуждение

При помощи разработанного алгоритма были обработаны данные эксперимента по измерению отражения от кремниевого образца под скользящим углом 5° в спектральном диапазоне 8–25 nm. Полученная в результате обработки спектральная зависимость коэффициента отражения представлена на графике (рис. 7). Каждая точка графика получена усреднением 3–5 независимых

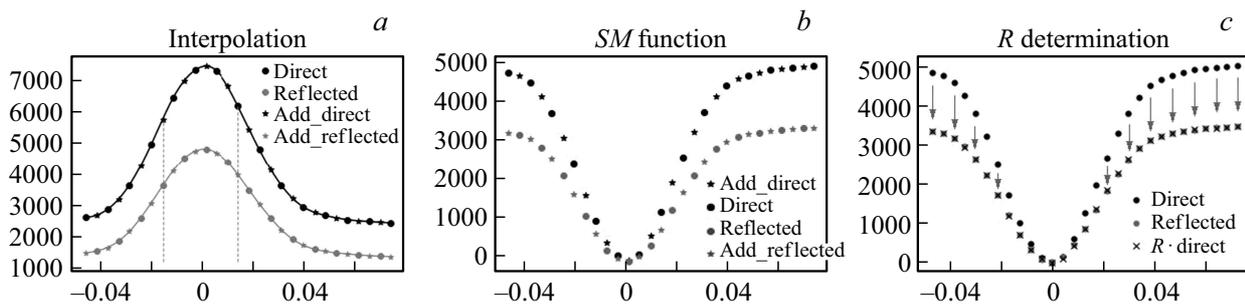


Рис. 6. Этапы 2–4 обработки спектральной линии 22.7 nm. *a* — проведение сплайнов и интерполяция спектрального профиля линии; *b* — построение функции спектральной модуляции; *c* — определение коэффициента отражения.

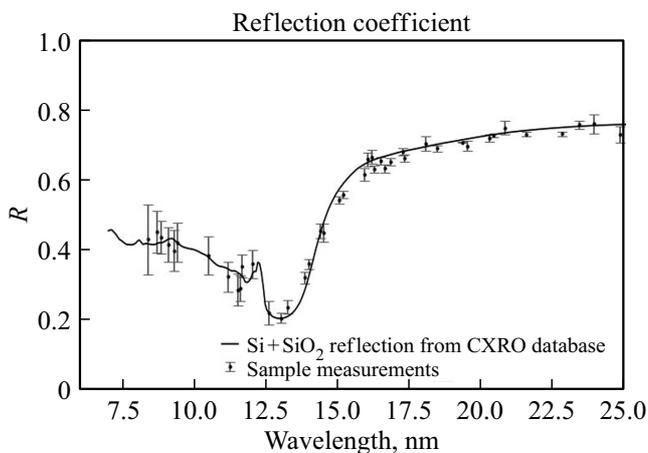


Рис. 7. Спектральная зависимость коэффициента отражения от кремния в диапазоне 8–25 nm. Точки — измеренные значения, кривая — данные базы CXRO [14].

измерений. Отмеченные погрешности соответствуют величине 3σ . На графике экспериментальные значения сравниваются с данными базы CXRO [14] коэффициента отражения кремния. Наилучшее совпадение графиков достигается при учете на поверхности кремния дополнительного слоя SiO_2 толщиной 4 nm.

Средний разброс экспериментальных точек относительно данных CXRO находится на уровне нескольких процентов. Измеренные значения воспроизводят область аномальной дисперсии кремния.

Чувствительность CCD-матрицы падает в 2 раза в области длин волн $\lambda < 13$ nm [15], что можно видеть по спектрограмме, приведенной на рис. 2. Связанное с этим увеличение погрешности точек на графике (рис. 7) определяется пуассоновской статистикой числа квантов излучения, поглощенных в одном пикселе CCD-детектора. Для достижения точности порядка 1% требуется увеличить количество измерений в несколько раз либо использовать более интенсивный источник излучения.

Одним из источников систематических погрешностей является астигматизм спектрометра. Интенсивность изображения спектральной линии может изме-

няться вдоль ее направления из-за возможной непараллельности ножей щели и неоднородности отражения решетки вдоль штрихов. Излучение, прошедшее и отраженное от образца, соответствует разным участкам изображения спектральной линии. На рис. 3, *a* цифрами отмечены области спектральной линии, соответствующие участкам отраженного (1) и прошедшего (2) излучения. Для учета отмеченного эффекта астигматизма необходимо сравнить спектрограммы по участкам 1 и 2. Для них проводим процедуру, аналогичную определению R по описанному выше алгоритму; полученные для разных линий значения усредняем. В нашем случае эта поправка составила величину 3%.

Вторым источником систематических погрешностей выступает пространственная неоднородность чувствительности матрицы. Для ее учета проводился дополнительный эксперимент по созданию равномерной освещенности CCD-матрицы. Источник ЭУФ излучения (вакуумная искра, $C = 0.01 \mu\text{F}$, $U = 10 \text{ kV}$) с размером около 1 mm располагался на расстоянии 1 m от CCD-матрицы. Это расстояние гарантировало равномерность освещенности CCD-матрицы в пределах 0.02%. Регистрировалось распределение интенсивности по ее поверхности. При этом сравнивались сигналы из областей, соответствующих положениям 1' и 2' на рис. 3, *b*. Для нашего детектора эта поправка составила величину около 2%.

Заключение

Описанная в настоящей работе методика обработки вместе с предложенной ранее одноканальной схемой измерения коэффициента отражения в скользящем падении представляют концепцию рефлектометра, актуального для задачи определения оптических констант материалов в ЭУФ диапазоне. Максимальный угол скольжения определяется размером CCD-матрицы и составляет величину 15–20°. Относительная спектральная ширина излучения в отдельной точке определяется в основном доплеровской шириной линий, излучаемых плазмой источника, и для диапазона электронных температур 10–50 eV составляет величину порядка $\delta\lambda/\lambda \sim 10^{-4}$.

Ценой простоты описываемой методики является отсутствие возможности плавной перестройки длины волны, что может быть важно для исследования областей аномальной дисперсии. Возможным решением здесь может быть использование других источников излучения, таких как вакуумная искра или лазерная плазма, для которых доступен очень широкий выбор излучающих химических элементов. В имеющихся базах данных [13] можно найти спектральные линии различных ионов практически во всем ЭУФ диапазоне.

Финансирование работы

Работа выполнена в рамках проекта Госзадания FFUU-2022-0005.

Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

Список литературы

- [1] V.Y. Banine, K.N. Koshelev, G.H.P.M. Swinkels. *J. Phys. D: Appl. Phys.*, **44** (25), 253001 (2011). DOI: 10.1088/0022-3727/44/25/253001
- [2] F. Schäfers, P. Bischoff, F. Eggenstein, A. Erko, A. Gaupp, S. K?nstner, M. Mast, J.-S. Schmidt, F. Senf, F. Siewert, A. Sokolov, T. Zeschke. *J. Synchrotron Radiat.*, **23** (1), 67–77 (2016). DOI: 10.1107/s1600577515020615
- [3] B. Beckhoff, A. Gottwald, R. Klein, M. Krumrey, R. Müller, M. Richter, F. Scholze, R. Thornagel, G. Ulm. *Phys. Status Solidi B*, **246** (7), 1415–1434 (2009). DOI: 10.1002/pssb.200945162
- [4] J.H. Underwood, E.M. Gullikson. *J. Electron Spectrosc. Relat. Phenom.*, **92** (1–3), 265–272 (1998). DOI: 10.1016/s0368-2048(98)00134-0
- [5] R. Ciesielski, Q. Saadeh, V. Philipsen, K. Opsomer, J.P. Soulié, M. Wu, P. Naujok, R. van de Kruijs, C. Detavernier, M. Kolbe, F. Scholze, V. Soltwisch. *Appl. Opt.*, **61** (8), 2060–2078 (2022). DOI: 10.1364/AO.44715
- [6] M. Banyay, L. Juschkin. *Appl. Phys. Lett.*, **94** (6), 063507 (2009). DOI: 10.1063/1.3079394
- [7] K. Bergmann, O. Rosier, C. Metzmacher. *Rev. Sci. Instrum.*, **76** (4), 043104 (2005). DOI: 10.1063/1.1884387
- [8] В.О. Догадин, С.Ю. Зуев, Н.Н. Салашенко, Н.И. Чхало, А.В. Щербakov. *Поверхность. Рентгеновские, синхротронные и нейтронные исследования*, **7**, 77 (2015). [V.O. Dogadin, S.Yu. Zuev, N.N. Salashchenko, N.I. Chkhalo, A.V. Shcherbakov. *J. Surf. Invest.: X-Ray, Synchrotron Neutron Tech.*, **9** (4), 726–734 (2015). DOI: 10.1134/s1027451015040072].
- [9] С.А. Гарахин, И.Г. Забродин, С.Ю. Зуев, И.А. Каськов, А.Я. Лопатин, А.Н. Нечай, В.Н. Полковников, Н.Н. Салашенко, Н.Н. Цыбин, Н.И. Чхало, М.В. Свечников. *Квант. электрон.*, **47** (4), 385–392 (2017). [S.A. Garakhin, I.G. Zabrodin, S.Y. Zuev, I.A. Kas'kov, A.Y. Lopatin, A.N. Nechay, V.N. Polkovnikov, N.N. Salashchenko, N.N. Tsybin, N.I. Chkhalo, M.V. Svechnikov. *Quantum Electron.*, **47** (4), 385–392 (2017). DOI: 10.1070/qel16300].
- [10] D.B. Abramenko, P.S. Antsiferov, L.A. Dorokhin, V.V. Medvedev, Y.V. Sidelnikov, N.I. Chkhalo, V.N. Polkovnikov. *Opt. Lett.*, **44** (20), 4949 (2019). DOI: 10.1364/ol.44.004949
- [11] P.S. Antsiferov, L.A. Dorokhin, P.V. Krainov. *Rev. Sci. Instrum.*, **87** (5), 053106 (2016). DOI: 10.1063/1.4945654
- [12] P.S. Antsiferov, L.A. Dorokhin. *J. Appl. Phys.*, **113** (24), 243303 (2013). DOI: 10.1063/1.4811714
- [13] *NIST Chemistry WebBook* [Электронный ресурс]. URL: <https://webbook.nist.gov/chemistry/>
- [14] *CXRO X-Ray Interactions With Matter* [Электронный ресурс]. URL: https://henke.lbl.gov/optical_constants/
- [15] *Greateyes* [Электронный ресурс]. URL: https://www.greateyes.de/projects/greateyes/static/custom/file/greateyes_InVacuum_Camera_Series_Rev03.pdf