

08

Определение толщин ультратонких поверхностных пленок в наноструктурах по энергетическим спектрам отраженных электронов

© С.Ю. Купреенко,¹ Н.А. Орликовский,² Э.И. Рау,¹ А.М. Тагаченков,³ А.А. Татаринцев²

¹ Московский государственный университет им. М.В. Ломоносова,
119991 Москва, Россия

² Физико-технологический институт РАН,
117218 Москва, Россия

³ Институт нанотехнологий микроэлектроники РАН,
Москва, Россия
e-mail: rau@phys.msu.ru

(Поступило в Редакцию 19 февраля 2015 г.)

Рассмотрен новый метод определения толщин оптически непрозрачных пленок на массивных подложках в нанометровом диапазоне размеров. Метод базируется на анализе и измерении энергетических спектров обр-ратнорассеянных электронов. Толщины локальных пленочных наноструктур определяются по амплитудным значениям спектров и по их сдвигу на энергетической оси.

Введение

В настоящее время в связи с бурным развитием нанотехнологий фабрикуется все большее количество разнообразных трехмерных структур микро- и нанoeлектроники, имеющих многослойное тонкопленочное строение с размерами составляющих фрагментов в единицы и десятки нанометров как в латеральном, так и в глубинном измерении. Соответственно возникает проблема адекватной неразрушающей диагностики таких трехмерных сэндвич-структур, их метрологии по всем трем координатам. Если для метрологического обеспечения линейных латеральных размеров уже разработан аппарат нанометрологии, то проблема измерения „глубинных“ размеров нанобъектов, т.е. количественное неразрушающее зондирование трехмерных наноструктур по глубине, находится на стадии поиска оптимального решения.

Существующие, наиболее распространенные оптические методы измерений толщин тонкопленочных покрытий (эллипсометрические, интерференционные) не обладают необходимым для наноструктур латеральным разрешением и требуют оптической прозрачности пленок, что существенно ограничивает область их применимости. Рентгеновский дифракционный метод определения толщин пленок, как и метод, основанный на резерфордском обратном рассеянии ионов, также не обладают достаточным латеральным разрешением. Наиболее приемлемым способом для указанной цели является сканирующий зондовый профилометр [1], но он требует наличия ступеньки на границе пленка–подложка.

Большое распространение получил способ измерения толщин свободных пленок и пленок на подложках, основанный на зависимости коэффициента отраженных электронов (ОЭ) от толщины пленки и энергии облучающих электронов [2,3]. Иногда практикуется измерение толщин пленочных покрытий по амплитуде энергетических спектров ОЭ [4] или по сдвигу максимума этих

спектров [5–7]. Но по указанным электронно-зондовым методам, как правило, требуется предварительная калибровка экспериментального устройства по набору тестовых контрольных образцов, состоящих из различных материалов и пленок различной толщины. Обеспечение такого большого числа калибровочных образцов с различным сочетанием состава материала и подложки и различными толщинами пленок является практически неразрешимой задачей.

В связи с указанными ограничениями в настоящей работе предлагается более корректный и универсальный путь решения проблемы измерений локальных толщин пленочных покрытий, в значительной степени лишенный перечисленных выше недостатков и не требующий наличия эталонных калиброванных тест-образцов.

Экспериментальные результаты

На рис. 1 схематически представлены две условные структуры, которые демонстрируют уникальность предлагаемого метода. Если фрагмент наноструктуры, состоящей из материала с атомным номером Z_2 и толщиной d скрыт под плоской поверхностью в материале с атомным номером Z_1 на глубине t , то в случае нанометровых латеральных размеров x и нанометровых же размеров t и d только сканирующий электронный микроскоп (СЭМ) с его нанометровым электронным зондом способен визуализировать указанную структуру (рис. 1, а), находящуюся на массивной (толстой) подложке.

Определение величины заглубления t наноструктуры и есть цель настоящей работы. В настоящее время такое измерение доступно только методом поперечного среза структуры (например, ионным скальпелем) и последующим его наблюдением со стороны среза в современном

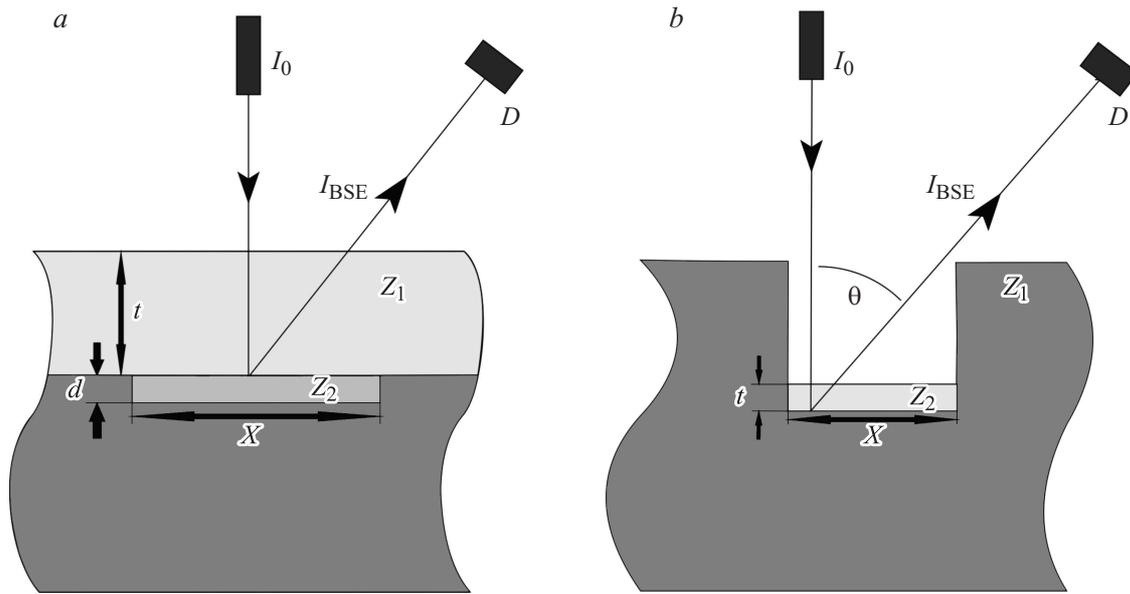


Рис. 1. Условное представление наноструктур „пленка на подложке“, для которых определяется толщина t пленок.

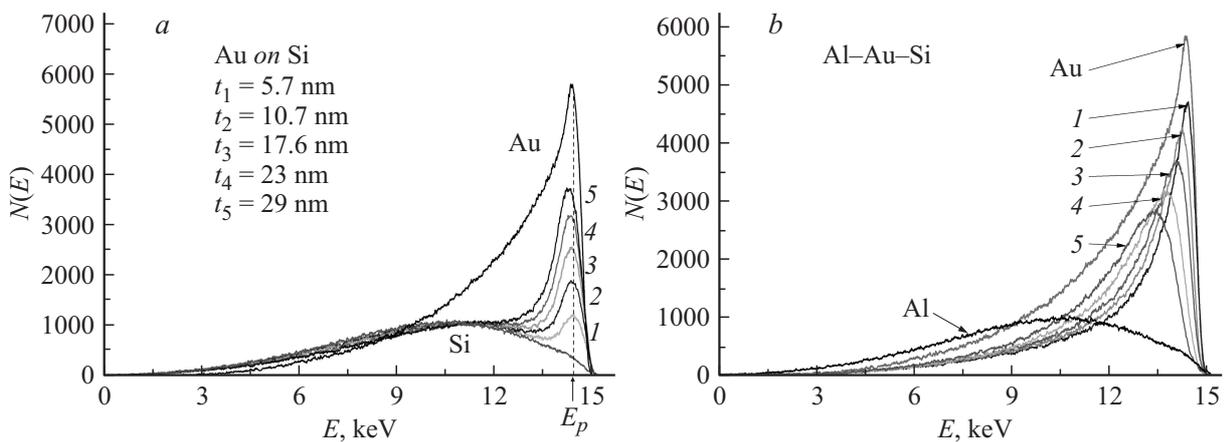


Рис. 2. *a* — экспериментальные спектры $N(E)$ отраженных электронов от массивных образцов Si, Au и пленок Au толщиной t на Si-подложке; *b* — спектры массивных образцов Au, Al и композиции трехслойного образца, состоящего из пленок Al толщиной 30, 60, 100, 150, 220 нм на Au-пленке толщиной 30 нм, нанесенных на Si-подложку.

высокоразрешающем СЭМ. Но указанный метод является разрушающим, что во многих случаях недопустимо или нежелательно. Аналогичные трудности возникают и со структурой на рис. 1, *b*, где пленка Z_2 толщиной t находится в глубине узкого (нанометровых размеров) углубления в матрице с атомным номером Z_1 . В данной ситуации ограничением является только угол выхода θ отраженного потока электронов $I_{OЭ}$. На рис. 1 через I_0 обозначен падающий поток электронов в СЭМ, D — положение детектора ОЭ, в данном случае — входная диафрагма тороидального электронного спектрометра, установленного в СЭМ [8].

Для контрольных экспериментов было изготовлено несколько тестовых структур „пленка на подложке“ с заданными и точно измеренными толщинами тонкопленочных слоев, которые различались по толщине и химическому составу материалов. Образцы получали

термическим напылением слоев металла на подложку в вакуумной камере с вольфрамовым испарителем и устройством контроля толщин напыляемых пленок на основе кварцевого резонансного датчика, обеспечивающего погрешность определения толщины не хуже 10%. После каждого этапа нанесения очередного слоя проводилось контрольное, более прецизионное измерение толщины по высоте ступеньки на границе пленки с подложкой с помощью зондового контактного профилометра „Talystep“ или атомно-силового микроскопа (для ультратонких пленок). Оба метода обладают погрешностью в определении толщин пленок до 5%. Экспериментальная спектроскопия образцов в отраженных электронах проводилась на СЭМ LEO 1455 VP (Zeiss), снабженном лабораторной моделью тороидального секторного электростатического спектрометра [8].

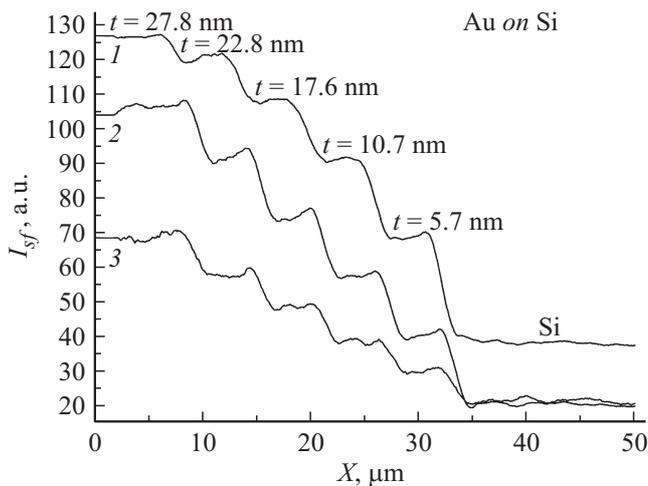


Рис. 3. Профили сигналов спектрометра, снятые поперек полосок Au толщиной t , нанесенных на массивную Si-подложку, снятые при $E_0 = 5$ (1) и 15 keV (2, 3) при относительной энергии настройки спектрометра $E_p/E_0 = 0.94$ (1, 3) и 0.96 (2).

Типичные спектры распределения ОЭ по энергиям для пленки из материала с более высоким атомным номером Z_f , чем подложки Z_s (т.е. $Z_f > Z_s$), представлены на рис. 2, а, а для пленки из легкого материала на подложке из тяжелого материала (т.е. $Z_f < Z_s$) на рис. 2, б. Там же приводятся спектры от массивных мишеней из материалов, входящих в структуру „пленка–подложка“.

Одним из контрольных образцов был кристалл кремния, на котором нанесены тонкие полоски из слоев золота шириной $10\ \mu\text{m}$ и толщиной $t = 5.7, 10.7, 17.6, 23$ и $29\ \text{nm}$. Профили сигнала спектрометра при сканировании электронного зонда поперек указанных полосок приводятся на рис. 3, которые указывают на хорошую чувствительность и избирательность экспериментального устройства к перепадам толщин пленок. Профилограммы сигнала демонстрируют также, что более точные результаты для расчетов получаются при более высокой энергии настройки спектрометра E_p/E_0 . Из формы спектров на рис. 2 следует вывод, что изменения величины сдвигов спектров по энергетической оси меньше, чем изменения соответствующих амплитуд спектров при фиксированной энергии спектрометра E_p/E_0 в зависимости от толщины пленочных покрытий. Вследствие этого обстоятельства следует, что измерения толщин пленок предпочтительней проводить по изменениям амплитуд сигналов, а не по энергетическому сдвигу спектров, что и осуществляется в настоящей работе.

Расчет толщин нанопленочных покрытий

Если для массивных образцов существуют довольно точные выражения для дифференциальных коэффициентов ОЭ, определяющих энергетические спектры

(см., например, [9]), то для слоистых структур данные либо слишком громоздки для практических оценочных вычислений [7], либо требуют моделирования методом Монте-Карло [10]. Поэтому в настоящей работе мы воспользуемся приемом расчета сигнала от слоистых образцов, применяемым для интегральных коэффициентов ОЭ [3], но с учетом того, что берутся значения дифференциальных коэффициентов на измеренных спектрах ОЭ. Тогда в общем виде сигнал I_{sf} при фиксированной энергии E_p/E_0 ОЭ для образца, состоящего из материала подложки с атомным номером Z_0 , и пленки толщиной t из материала с атомным номером Z_f , равен

$$I_{sf} = I_{S_0} + (I_{f_0} - I_{S_0}) \frac{I_f}{I_{f_0}}, \quad (1)$$

где I_{S_0} и I_{f_0} — значения измеренных с помощью спектрометра сигналов от массивных образцов с материалами Z_0 и Z_f соответственно, I_f — рассчитанная величина сигнала от свободной пленки Z_f толщиной t [9]

$$I_f = I_0 \left[1 - \exp\left(-2A \frac{t}{R \cos \theta}\right) \right], \quad (2)$$

где θ — угол регистрации ОЭ с помощью спектрометра (в нашем случае $\theta = 25^\circ$). Параметр затухания A зависит от материала пленки и энергии первичных электронов, определяющих глубину их пробега R_f . Из (1) и (2) следует, что при отсутствии пленки на поверхности ($t = 0$) получаем сигнал только от массивной мишени–подложки $I_{sf} = I_{S_0}$, а при толщине пленки $t > R/A$ имеем сигнал как для случая массивной мишени, состоящей из материала пленки Z_f , т.е. $I_{sf} = I_{f_0}$. Естественно, что эти граничные условия зависят от атомных номеров материала мишени, от толщины пленки, от энергии облучающих электронов E_0 , а тем самым и от глубины R пробега этих электронов в материале мишени [11]

$$R [\text{nm}] = \frac{27.6AE_0^{1.67} [\text{keV}]}{\rho Z^{0.89}}, \quad (3)$$

где ρ — плотность $[\text{g}/\text{cm}^3]$, A — атомный вес. Входящий в (2) параметр $A = 2R/x_c$ зависит от глубины x_c центра диффузии первичных электронов, которая довольно хорошо выражается следующим соотношением [11]

$$x_c = \frac{R}{2} \left(1 - \frac{1.21\gamma^2}{(1 + \gamma^2)} \right), \quad (4)$$

где $\gamma = 0.187Z^{0.667}$, что дает, например, для Au $x_c/R = 0.137$, для Al $x_c/R = 0.344$.

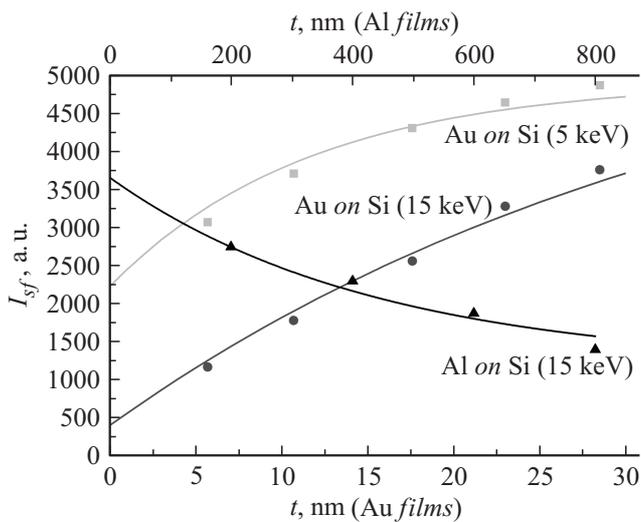


Рис. 4. Рассчитанные и экспериментально измеренные сигналы ОЭ для образцов „пленка на подложке“ в зависимости от толщин пленок t . Эксперименты проведены для Au-пленки на Si-подложке при $E_0 = 5$ и 15 keV и при $E_0 = 15$ keV для Al-пленки на Cu-подложке.

В итоге для исследованных образцов имеем следующие расчетные соотношения

$$I_{sf}(\text{Au-Si}) = I_{\text{Si}_0} + (I_{\text{Au}_0} - I_{\text{Si}_0}) \times \left[1 - \exp\left(-14.6 \frac{t_{\text{Au}}}{R_{\text{Au}} \cos \theta}\right) \right],$$

$$I_{sf}(\text{Al-Cu}) = I_{\text{Cu}_0} + (I_{\text{Al}_0} - I_{\text{Cu}_0}) \times \left[1 - \exp\left(-5.814 \frac{t_{\text{Al}}}{R_{\text{Al}} \cos \theta}\right) \right],$$

где экспериментально измеренные значения в первом соотношении равны $I_{\text{Si}_0} = 400$, $I_{\text{Au}_0} = 6300$ при $I_0 = 1$ nA, а во втором случае $I_{\text{Cu}_0} = 3660$, $I_{\text{Al}_0} = 1180$ при $I_0 = 4$ nA, R_{Au} и R_{Al} определяются по формуле (3), $\cos \theta = \cos 25^\circ = 0.906$. Результаты расчетов приводятся на рис. 4.

Из рис. 3 и 4 видно, что большая линейность зависимостей $I_{sf} = f(t)$ наблюдается при измерениях с более высокими значениями E_0 и E_p/E_0 , т.е. при высоких энергиях и на более высокоэнергетических участках спектров. При этом расчетные соотношения $I_{sf} = f(t)$ зависят от выбора фиксированной энергии спектрометра E_p справа или слева от максимумов на спектрах проводятся вычисления, т.е. зависят от наиболее вероятной глубины отражения $x_{np} = (x_c)^p$ в сравнении с толщиной t : $x_{np} < t$ или $x_{np} > t$. Параметр p определяется из соотношения $p = \eta^{-0.333}$, где η — коэффициент ОЭ [9]. В принципе более точные результаты измерения t получаются при выборе энергии настройки спектрометра $E_p/E_0 > E_{\text{max}}$ для случая $Z_f > Z_s$, и при $E_p/E_0 < E_{\text{max}}$ для $Z_f < Z_s$, где E_{max} — положение максимума энергетического спектра от более

тяжелого массивного материала образца. Для сложных многослойных структур, подобным представленным на рис. 2, b спектрам, расчеты значительно усложняются. Задача нахождения толщин таких заглубленных пленок в настоящее время находится в стадии решения.

Заключение

Измерение толщин ультратонких пленочных покрытий и глубин залегания элементов структуры, имеющих нанометровые латеральные размеры, проводится с большой точностью с помощью энергетических спектров отраженных электронов в сканирующем электронном микроскопе.

По аналитическим выражениям для дифференциальных коэффициентов отраженных электронов, взятых при фиксированной энергии настройки спектрометра, определяются амплитуды детектируемых сигналов от массивных образцов, составляющих систему „пленка на подложке“, и от исследуемых образцов. Значения экспериментально измеренных сигналов на спектрах используются в расчетных соотношениях для определения искомым толщин пленок. Абсолютная погрешность измерений составляет доли нанометров для тонких и единицы нанометров для относительно толстых пленок, т.е. в общем случае ошибки определения толщин пленочных покрытий не превосходят 5%.

Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ (проект 15-02-01557).

Список литературы

- [1] Миронов В.Л. Основы сканирующей зондовой микроскопии. М.: Техносфера, 2004. 520 с.
- [2] Niedrig H. // J. Appl. Phys. 1982. Vol. 53. P. R15–R31.
- [3] DeNee P.B. // In: Scanning Electron Microscopy. SEM Inc. Ed. O'Hare. Chicago, 1978. Vol. 1. P. 741–745.
- [4] Schlichting F., Berger D., Niedrig H. // Scanning. 1999. Vol. 21. P. 197–200.
- [5] Rau E., Hoffmeister H., Sennov R., Kohl H. // J. Phys. D: Appl. Phys. 2002. Vol. 35. P. 1433–1437.
- [6] Dapor M., Rau E., Sennov R. // J. Appl. Phys. 2007. Vol. 102. P. 063 705–063 708.
- [7] Афанасьев В.П., Лубенченко А.В., Поволоцкий А.Б., Федорович С.Д. // ЖТФ. 2002. Т. 72. С. 101–106.
- [8] Гостев А.В., Орликовский Н.А., Рау Э.И., Трубицин А.А. // ЖТФ. 2013. Т. 83. С. 140–147.
- [9] Рау Э.И., Дицман С.А., Зайцев С.В., Лермонтов Н.В., Лукьянов А.Е., Купреенко С.Ю. // Изв. РАН. Сер. физ. 2013. Т. 77. С. 1050–1058.
- [10] Reimer R., Bongeler M., Kassens M., Liebscher F., Senkel R. // Scanning. 1991. Vol. 13. P. 381–385.
- [11] Kanaya K., Okayama S. // J. Phys. D: Appl. Phys. 1972. Vol. 5. P. 43–49.