

06;13

## Исследование многослойных тонкопленочных структур методом резерфордовского обратного рассеяния

© В.И. Бачурин, Н.С. Мелесов, Е.О. Паршин, А.С. Рудый, А.Б. Чурилов

Ярославский филиал Физико-технологического института им. К.А. Валиева РАН,  
Ярославль, Россия  
E-mail: vibachurin@mail.ru

Поступило в Редакцию 20 марта 2019 г.

В окончательной редакции 20 марта 2019 г.

Принято к публикации 25 марта 2019 г.

Представлены результаты изучения возможностей метода резерфордовского обратного рассеяния для анализа многослойной структуры, содержащей слои нанометрового масштаба с близкими по массам элементами. Показано, что резерфордовское обратное рассеяние позволяет с достаточно высокой точностью определять состав таких структур, толщину пленки в целом и толщины отдельных слоев и может использоваться для входного контроля технологических структур, применяемых в микро- и нанотехнологиях.

**Ключевые слова:** многослойные тонкопленочные структуры, послойный анализ, резерфордовское обратное рассеяние.

DOI: 10.21883/PJTF.2019.12.47914.17798

Многослойные тонкопленочные структуры находят широкое применение в микро- и нанотехнологиях. Для оптимизации свойств таких пленок, зависящих от химического состава слоев и их толщин, необходимо иметь информацию о распределении элементов по глубине, а также о толщине и плотности слоев пленки. Эти данные можно получать, используя как разрушающие поверхность образца методы (вторично-ионная масс-спектрометрия, растровая электронная оже-спектроскопия и др.), так и неразрушающие методы анализа (резерфордовское обратное рассеяние, РОР) [1,2]. К преимуществам первых относится достаточно хорошее разрешение по глубине, которое при подборе условий ионной бомбардировки может составлять единицы нанометров. Однако ионное перемешивание и развитие топографического рельефа при распылении приводят к ухудшению послойного разрешения при увеличении числа слоев, а проведение количественного анализа требует применения эталонных образцов. РОР является неразрушающим количественным методом анализа поверхности и широко применяется при изучении химического состава и толщин пленок субмикронного масштаба. К недостаткам метода можно отнести невысокое послойное разрешение (5–15 nm) и трудности, возникающие при анализе структур с близкими по массе элементами. Но имеющиеся возможности моделирования экспериментальных спектров позволяют получать надежную информацию при послойном анализе многослойных тонкопленочных структур нанометрового масштаба, содержащих элементы с близкими массами [3,4].

В работе представлены результаты изучения возможностей метода РОР для анализа таких структур. В качестве образца использовались многослойные пленки, полученные методом магнетронного напыления. В табл. 1 представлены толщины слоев и содержание в них

элементов. Числа перед составом слоя указывают его толщину в нанометрах по данным технологического процесса. Подобного типа пленки используются в настоящее время для создания магнитно-туннельных переходов с высокими функциональными характеристиками. Внедрение их в последующие схемы требует проведения более 20 технологических операций. Поэтому желательное проведение входного контроля подобных структур на предмет состава и толщины слоев. Анализ, проведенный ранее с помощью вторично-ионной масс-спектрометрии, не позволил получить достоверную информацию о распределении элементов в слоях и их толщинах в пленке [5].

Исследование образцов проводилось на установке K2MV (HVEE). Использовались ионы  $\text{He}^+$  с энергией 1.2 и 1.9 MeV и ионы  $\text{He}^{++}$  с энергией 3.1 MeV. Угол рассеяния ионов во всех экспериментах составлял  $\theta = 165^\circ$ , угол падения ионного пучка на образец при энергии 1.2 MeV был равен  $\alpha = 30^\circ$  (угол выхода из образца  $\beta = 45^\circ$ ), при остальных энергиях  $\alpha = 8.6^\circ$  ( $\beta = 22.5^\circ$ ). Для создания модели образца в точке P1 (рис. 1) регистрировались спектры обратнорассеянных ионов при различных экспериментальных условиях. Из-за различных параметров измерений на этих спектрах происходит наложение сигналов элементов в отличающихся комбинациях, что использовалось для подбора модели, удовлетворяющей всем спектрам сразу [6]. Моделирование экспериментальных спектров проводилось с помощью программы SIMNRA [7].

При рассеянии ионов  $\text{He}^{++}$  с энергией 3094 keV удалось практически полностью разрешить сигналы от Ru (слои 1 и 6) и от внутренних слоев Ta (слои 10 и 12). В спектрах, полученных при рассеянии ионов  $\text{He}^+$  с энергией 1237 и 1856 keV, большинство пиков соседних элементов накладывается друг на друга, но из них

**Таблица 1.** Структура и состав образца по данным технологического процесса напыления пленки и результатам моделирования спектров POP

Номер слоя	Слой	Состав			Толщина, $10^{15}$ atom/cm <sup>2</sup> (nm)
		Элемент	Содержание		
			at.%	$10^{15}$ atom/cm <sup>2</sup>	
1	2	3	4	5	6
1	7Ru	Ru	100	51.479	51.479 (6.96)
2	10Ta	Ta	100	51.512	51.512 (9.30)
3	2.5Co <sub>0.60</sub> Fe <sub>0.20</sub> B <sub>0.20</sub>	Co	60	10.5	17.5
		Fe	20	3.5	
		B	20	3.5	
4	2MgO	Mg	50	10.1	20.2 (1.89)
		O	50	10.1	
5	2.5Co <sub>0.60</sub> Fe <sub>0.20</sub> B <sub>0.20</sub>	Co	60	10.5	17.5
		Fe	20	3.5	
		B	20	3.5	
6	0.9Ru	Ru	100	5.904	5.904 (0.8)
7	2.0Co <sub>0.70</sub> Fe <sub>0.30</sub>	Co	63.1557	15.343	24.294
		Fe	36.8443	8.951	
8	16Ir <sub>0.18</sub> Mn <sub>0.82</sub>	Ir	24.3649	26.632	109.305
		Mn	75.6351	82.673	
9	3NiFe	Ni	62.6456	20.435	32.620
		Fe	37.3544	12.185	
10	5Ta	Ta	100	26.555	26.555 (4.79)
11	30CuN	Cu	87.1679	230.471	264.399
		N	12.8321	33.928	
12	5Ta	Ta	100	26.552	26.552 (4.79)

удалось выделить уровень сигнала Co и положение экстремума пика Ir.

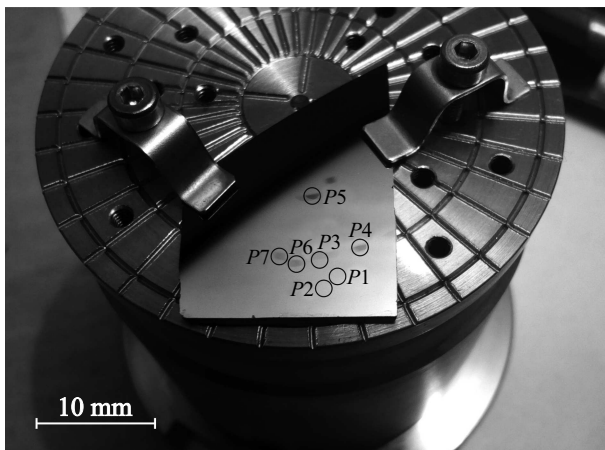
Получение информации о легких элементах в образце (B, N, O, Mg) затруднено, поскольку их сигналы сравнимы с уровнем шума. Однако использование ионов He<sup>++</sup> с энергией 3052 keV позволило оценить содержание O в слое MgO с помощью резонансного ядерного рассеяния, сечение которого более чем в 20 раз превышает резерфордовское сечение рассеяния [8].

В табл. 1 представлены состав и толщины слоев пленки. В столбце 1 указан номер слоя от поверхности, в столбце 2 — толщина и химический состав слоя по данным технологического процесса осаждения пленки, в столбце 3 — элементы, содержащиеся в слое, в столбцах 4 и 5 — содержание элементов в слое, а в столбце 6 — толщина слоев по результатам моделирования. При переводе толщины слоев из принятой в методе POP шкалы atom/cm<sup>2</sup> в nm плотность моноэлементных слоев и слоя оксида магния принималась равной плотности массивных материалов. Количество Ru и Ta в слоях определено с ошибкой, не превышающей  $\pm 5\%$ , а O — с точностью не хуже  $\pm 9\%$ . Оценка погрешности в определении содержания остальных элементов

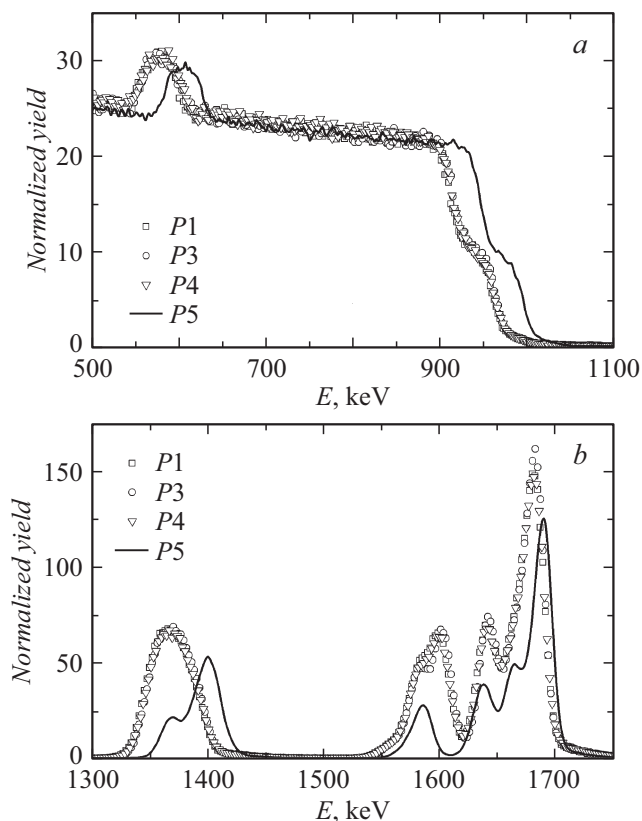
в образце затруднительна, поскольку при построении модели изменение содержания одного элемента может компенсироваться изменением содержания другого.

Из табл. 1 видно, что химический состав слоев модельного образца заметно отличается от заявленного начиная со слоя 7. Отметим низкое содержание N в слое CuN. По данным рентгеноструктурного анализа, выполненного в [5], в слое 11 присутствует стехиометрический Cu<sub>3</sub>N. По результатам POP-анализа можно заключить, что состав этого слоя представляет собой смесь чистой меди и нитрида меди (Cu<sub>3</sub>N). Различия состава в многокомпонентных слоях могут быть связаны с подгонкой модели к экспериментальным спектрам. Видно, что толщины слоев и их состав, измеренные по результатам анализа спектров POP, довольно близки в большинстве случаев к данным технологического процесса напыления структуры.

Для исследования возможности контроля изменения толщины по образцу проводились сравнения спектров, полученных в различных точках пленки, расположенных вблизи края пластины (рис. 1). На рис. 2 представлены низкоэнергетические и высокоэнергетические части спектров POP, полученные в точках P1, P3,



**Рис. 1.** Расположение точек многослойной структуры вблизи края пластины  $\text{SiO}_2/\text{Si}$ , в которых регистрировались спектры РОР.



**Рис. 2.** Сравнение низкоэнергетической (а) и высокоэнергетической (б) частей спектров РОР, полученных в точках  $P1$ ,  $P3$ ,  $P4$  и  $P5$ , при энергии зондирующих ионов  $\text{He}^+$ , равной 1856 keV.

$P4$ ,  $P5$ . Здесь и далее значения по оси ординат приводятся в нормированных единицах: выходной сигнал многоканального анализатора (МКА) делится на дозу экспозиции (в  $\mu\text{C}$ ), телесный угол детектора (в  $\text{sr}$ ) и ширину канала МКА (в  $\text{eV}$ ). Точка  $P3$  расположена

**Таблица 2.** Сравнение толщины пленки в различных точках образца

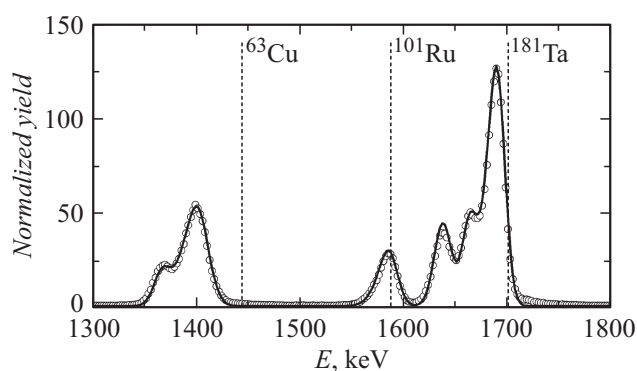
№ п/п	Точка	Расстояние до края, mm	Энергия, keV	Толщина, %
1	$P1$	9.0	1237, 3094, 1856	100
2	$P2$	9.0	3054	100
3	$P4$	8.4	1856	$99.7 \pm 0.3$
4	$P3$	7.3	1856	$98.9 \pm 0.4$
5	$P6$	6.4	3094	$95.7 \pm 0.4$
6	$P7$	4.8	1237	$91.4 \pm 0.7$
7	$P5$	2.5	1856	$65.5 \pm 0.8$

недалеко от точки  $P1$ , но несколько ближе к краю напыления. Точка  $P4$  расположена на большом удалении от точки  $P1$ , но на примерно равном с ней расстоянии от края напыления. Точка  $P5$  была взята вблизи края напыления.

Детальный анализ спектров, полученных при различных экспериментальных условиях, показывает, что спектры РОР в точках  $P4$  и  $P1$  практически совпадают. Для спектра, полученного в точке  $P3$ , наблюдается смещение сигнала от глубоких слоев относительно спектра в точке  $P1$ . Особенно отчетливо это заметно по смещению в область более высоких энергий сигнала Та слоя 12. Данный факт свидетельствует об интегральном уменьшении толщины пленки, наблюдение дифференциального уменьшения толщины каждого слоя выходит за пределы точности измерения. На спектре, полученном в точке  $P5$ , отчетливо наблюдается уменьшение толщины как всей пленки, так и каждого слоя по отдельности, причем уменьшение толщины в данном случае существенно превосходит наблюдаемые изменения в точке  $P3$ .

Если считать, что уменьшение толщины пленки при приближении к краю напыления происходит пропорционально во всех слоях модельной мишени, полученной для спектров, то можно получить количественные значения изменения толщины в каждой точке. При таком допущении толщина в точке  $P3$  меньше толщины в точке  $P1$  на  $1.1 \pm 0.4\%$ , в точке  $P4$  — на  $0.3 \pm 0.3\%$ , в точке  $P5$  — на  $34.5 \pm 0.8\%$ .

На рис. 3 в качестве примера приведено сравнение экспериментального спектра (точка  $P5$ ) со спектром, полученным на основе модели образца с уменьшенной на 34.5% толщиной. Наблюдается хорошее согласие экспериментального спектра со спектром модельного образца, что позволяет достаточно точно определять толщину тонкопленочной структуры. Более того, видно, что положение экстремума экспериментального сигнала последнего слоя тантала совпадает с модельным пиком, но высота его несколько ниже. Это может быть связано с некорректностью предположения пропорционального уменьшения толщины всех слоев при приближении к краю напыления. Наилучшего совпадения по высоте сигнала от последнего слоя удастся добиться при умень-



**Рис. 3.** Сравнение экспериментального спектра ROP в точке P5 с симулированным спектром (линия), полученным на основе модели образца с уменьшенной на 34.5% толщиной.

шении его толщины на 43%, а остальных по-прежнему на 34.5%. В этом случае наилучшим оказывается и смещение сигнала от подложки. Этот факт может свидетельствовать о возможности оценивать не только толщину многослойной структуры, но и толщины отдельных слоев.

Данные по анализу толщины образца сведены в табл. 2. Точки, с которых регистрировались спектры, приводятся в порядке уменьшения расстояния до края напыления.

Таким образом, в результате проведенных экспериментальных исследований показано, что метод Резерфордского обратного рассеяния позволяет с достаточно высокой точностью определять состав многокомпонентных многослойных тонкопленочных структур нанометрового масштаба, толщину пленки в целом и толщины отдельных слоев и может использоваться для входного контроля технологических структур, применяемых в микро- и нанотехнологиях.

### Финансирование работы

Работа выполнена в рамках государственного задания Министерства образования и науки РФ Ярославскому филиалу Физико-технологического института им. К.А. Валиева РАН по теме № 0066-2019-0003 на оборудовании Центра коллективного пользования „Диагностика микро- и наноструктур“.

### Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

### Список литературы

- [1] Oswald S., Baunack S. // *Thin Solid Films*. 2003. V. 425. P. 9–19. DOI: 10.1016/S0040-6090(02)01097-0
- [2] Escobar Galindo R., Gago R., Lousa A., Albella J.M. // *Trends Anal. Chem.* 2009. V. 28. P. 494–505. DOI: 10.1016/j.trac.2009.01.004

- [3] Коломиец В.Н., Кононенко И.Н., Кравченко С.Н., Захарев М.И., Сторижко В.Е., Ввозный В.И., Бугай А.Н., Девизенко А.Ю. // *Металлофизика и новейшие технологии*. 2016. Т. 38. № 6. С. 815–823. DOI: 10.15407/mfint.38.06.0815
- [4] Бачурин В.И., Мелесов Н.Н., Мироненко А.А., Паршин Е.О., Рудый А.С., Симакин С.Г., Чурилов А.Б. // *Поверхность*. 2019. № 4. С. 38–43. DOI: 10.1134/S0207352819040024
- [5] Трушин О.С., Симакин С.Г., Васильев С.В., Смирнов Е.А. // *Микроэлектроника*. 2018. Т. 47. № 6. С. 424–430. DOI: 10.31857/S054412690002768-1
- [6] Reis M.A., Chaves P.C., Corregitor V., Barradas N.P., Alves E., Dimroth F., Bett A.W. // *X-ray Spectrom.* 2005. V. 34. P. 372–375. DOI: 10.1002/xrs.841
- [7] Mayer M. SIMNRA User's Guide. Garching, Germany: Max-Planck-Institut für Plasmaphysik, 2011. 220 p.
- [8] Knapp J.A., Barbour J.C., Doyle B.L. // *J. Vac. Sci. Technol. A*. 1992. V. 10. P. 2685–2690. DOI: 10.1116/1.577959