

В.А. Городничев, М.Л. Белов, А.М. Белов,  
Ю.В. Федотов

## ЛАЗЕРНЫЙ РЕФЛЕКТОМЕТРИЧЕСКИЙ МЕТОД ИЗМЕРЕНИЯ ТОЛЩИНЫ И ХАРАКТЕРИСТИК РОСТА НАНОПЛЕНОК ЗОЛОТА НА КВАРЦЕВОЙ ПОДЛОЖКЕ В ПРОЦЕССЕ ИХ НАПЫЛЕНИЯ

*Описан лазерный рефлектометрический метод измерения толщины и характеристик роста пленок металлов на диэлектрической подложке в процессе их напыления, основанный на измерении коэффициентов отражения в разные моменты времени и определения неизвестных значений толщины и характеристик роста пленки путем численного решения нелинейных уравнений. Математическое моделирование показывает, что для диапазона толщин 5...50 нм при измерениях на длине волны 515 нм толщина пленки золота и параметры ее роста могут быть восстановлены со среднеквадратической погрешностью меньше 0,5 и 8 % соответственно при среднеквадратическом значении шума 1 %.*

**E-mail:** [ekomonit@bmstu.ru](mailto:ekomonit@bmstu.ru)

**Ключевые слова:** лазер, измерение толщины пленки, измерение характеристик роста пленки, рефлектометрический метод, пленка золота, кварцевая подложка.

Создание упорядоченных металлических наноструктур и контроль их параметров — сложная технологическая задача. Первым технологическим этапом при этом является напыление тонкого металлического покрытия на диэлектрическую подложку. В качестве металла (например, при использовании эффекта поверхностного плазменного резонанса, который можно наблюдать только на границах раздела металл—диэлектрик) оптимальным по ряду причин считается выбор золота [1]. В качестве диэлектрической подложки применяется кварц вследствие высокого коэффициента пропускания и отсутствия дисперсии диэлектрической проницаемости в видимом и ближнем инфракрасном диапазонах.

Перспективным методом контроля толщины тонких металлических пленок непосредственно в процессе их получения (*in situ*-метод) является лазерный рефлектометрический метод [2—6]. Он обладает практически всеми положительными качествами метода рентгеновской рефлектометрии, потенциально может быть реализован в виде менее сложного (а значит, и менее дорогого) оборудования и вполне может быть использован для измерения пленок золота толщиной от единиц до десятков нанометров [7].

Однако метод, приведенный в работе [7], позволяет определять только толщину пленки в момент измерения. Этого вполне достаточно для контроля толщины пленок при равномерной и не очень высокой скорости роста пленки, когда по ряду данных измерений толщины пленки можно спрогнозировать момент остановки процесса напыления (для получения определенной толщины пленки). При неравномерной и высокой скорости нарастания пленки для контроля толщины тонких пленок непосредственно в процессе их получения необходимо наряду с измерением толщины пленки определять и характеристики ее роста.

В данной работе исследуются возможности лазерного рефлектометрического метода измерения толщины и характеристик роста тонких металлических нанопленок на примере нанопленок золота на кварцевой подложке. Лазерный рефлектометрический метод использует только информацию о коэффициенте отражения трехслойной системы воздух (вакуум) — пленка — подложка в разные моменты времени. Перпендикулярное падение лазерного луча на подложку с пленкой в большинстве случаев упрощает использование рефлектометрического метода во встраиваемой в технологическое оборудование аналитической аппаратуре. Для измерений используется только одна длина волны зондирования  $\lambda$ .

Считаем, что пленка металлическая, с большим показателем поглощения, излучение падает из воздуха (вакуума) вертикально вниз

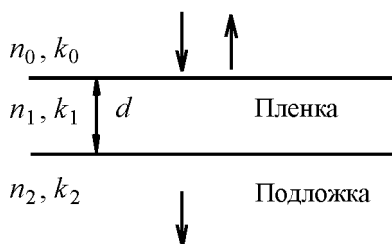


Рис. 1. Схема измерения

на систему пленка — подложка с плоскопараллельными границами (рис. 1). Подложка большой толщины и отражением от ее нижней поверхности можно пренебречь. Показатели преломления и поглощения пленки золота и кварцевой подложки на длине волны  $\lambda$  считаются известными. Примем показатель преломления вакуума (воздуха)  $n_0 = 1$ , а показатель поглощения  $k_0 = 0$ .

При вертикальном падении излучения коэффициент отражения системы воздух (вакуум) — пленка — подложка определяется следующим выражением [8]:

$$R(\lambda, d) = \frac{\left| (Z_1 + Z_2)(Z_1 - Z_0) e^{-i\frac{\alpha}{2}} + (Z_1 - Z_2)(Z_1 + Z_0) e^{i\frac{\alpha}{2}} \right|^2}{\left| (Z_1 + Z_2)(Z_1 + Z_0) e^{-i\frac{\alpha}{2}} + (Z_1 - Z_2)(Z_1 - Z_0) e^{i\frac{\alpha}{2}} \right|^2}, \quad (1)$$

где  $Z_j = \frac{1}{m_j}$ ;  $m_j = n_j + i k_j$ ;  $\alpha = \frac{4\pi m_1 d}{\lambda}$ ;  $d$  — толщина пленки;  $n_1$ ,

$k_1$  — показатели преломления и поглощения пленки золота на длине волны  $\lambda$ ;  $n_2$ ,  $k_2$  — показатели преломления и поглощения кварцевой подложки на длине волны  $\lambda$ .

Отраженное излучение регистрируется приемником измерителя. Регистрируемая мощность на длине волны  $\lambda$  (приемный объектив перехватывает все отраженное излучение)

$$P_{ref}(\lambda) = K(\lambda) P_0(\lambda) R(\lambda, d), \quad (2)$$

где  $P_0(\lambda)$  — мощность источника излучения на длине волны  $\lambda$ ;  $K(\lambda)$  — пропускание приемной оптической системы на длине волны  $\lambda$ .

Отсюда коэффициент отражения на длине волны  $\lambda$

$$R(\lambda, d) = \frac{P_{ref}(\lambda)}{K(\lambda) P_0(\lambda)}. \quad (3)$$

Мощность источника излучения можно измерить при использовании дополнительного измерительного канала, а пропускание приемной оптической системы — с помощью дополнительных калибровочных измерений, например от чистой (без пленки) поверхности подложки.

Условимся, что оптические характеристики пленки  $n_1$ ,  $k_1$  и подложки  $n_2$ ,  $k_2$  известны. Неизвестными являются характеристики роста пленки и толщина пленки  $d$ , которая в произвольный момент времени  $t_0$  и в короткий промежуток времени, следующий за  $t_0$  (в этот короткий промежуток времени проводят несколько близких по времени измерений коэффициента отражения  $R(\lambda, d)$ ), может быть представлена в виде некоторой модели, например:

$$d = d_0 + (t - t_0)d_1 + (t - t_0)^2 d_2, \quad (4)$$

где  $d_0 = d(t_0)$ ;  $t \geq t_0$ .

Таким образом, коэффициент отражения  $R(\lambda, d)$  будет зависеть от трех неизвестных параметров:  $d_0$ ,  $d_1$ ,  $d_2$  (для модели (4) роста пленки).

Для определения неизвестных параметров необходимо провести независимые измерения коэффициента отражения в разные моменты

времени и решить следующую систему нелинейных трансцендентных уравнений:

$$\begin{aligned} R_{mod}(t_1, d_0, d_1, d_2) &= R_{meas}(t_0); \\ &\dots \\ R_{mod}(t_n, d_0, d_1, d_2) &= R_{meas}(t_n), \end{aligned} \quad (5)$$

где  $R_{mod}(t_i, d_0, d_1, d_2)$  — теоретическое (модельное) значение коэффициента отражения в момент времени  $t_i$ ;  $R_{meas}(t_i)$  — измеренное в момент времени  $t_i$  значение коэффициента отражения;  $n$  — число измерений (моментов времени, в которых производится измерение коэффициента отражения).

Введем функцию невязки

$$E(d_0, d_1, d_2) = \sum_{i=0}^n [R_{meas}(t_i) - R_{mod}(t_i, d_0, d_1, d_2)]^2. \quad (6)$$

Значения параметров  $d_0, d_1, d_2$ , обращające в нуль функцию  $E(d_0, d_1, d_2)$ , будут решением системы нелинейных уравнений (5).

Отметим, что в общем случае не всякому набору значений  $R_{meas}(t_i)$  из области допустимых значений будет соответствовать набор параметров  $d_0, d_1, d_2$ , являющийся решением системы уравнений (5) и обращающий функцию невязки (6) в нуль. Даже при наличии небольшого шума измерения возможна такая ситуация, когда при определенных измеренных значениях коэффициента отражения не будет существовать решение системы уравнений (5). Таким образом, задача определения набора параметров пленки по результатам измерений коэффициента отражения в разные моменты времени является некорректно поставленной математической задачей [9, 10]. Для ее решения можно использовать, например, метод подбора квазирешения [10] (в ряде работ его называют методом поиска псевдорешений, в данной работе применяется терминология работы [10]).

Для некорректно поставленных задач вводится понятие квазирешения [10], и метод подбора позволяет найти приближение к нему. Метод подбора в рассматриваемом случае состоит в том, что для вектора параметров  $X = (d_0, d_1, d_2)$  (в некоторой ограниченной области, удовлетворяющей физическому смыслу задачи) решается прямая задача (вычисляется оператор  $R_{mod}(t_i, X)$ ) и определяется вектор пара-

метров  $\tilde{X} \in M$ , минимизирующий невязку между  $R_{mod}(t_i, \tilde{X})$  и  $R_{meas}(t_i)$ . Этот вектор параметров называется квазирешением системы уравнений (5).

Таким образом, искомое квазирешение (вектор параметров  $\tilde{X}$ ) находится из условия

$$\rho(R_{mod}(t_i, \tilde{X}), R_{meas}(t_i)) = \inf_{X \in M} \rho(R_{mod}(t_i, X), R_{meas}(t_i)), \quad (7)$$

где  $\rho(R_1, R_2)$  — расстояние между элементами  $R_1$  и  $R_2$ ;  $\inf_{X \in M} \rho$  — точная нижняя граница значений  $\rho$  при различных значениях вектора параметров  $X$ , принадлежащих области  $M$  (области, ограниченной значениями параметров  $d_0, d_1, d_2$ , определяемых физическим смыслом решаемой задачи).

Таким образом, задача подбора квазирешения системы уравнений (6) может быть сведена к поиску минимума функции невязки  $E(d_0, d_1, d_2)$  на некоторой ограниченной области значений параметров  $d_0, d_1, d_2$ , определяемой физическим смыслом решаемой задачи.

Для модели роста пленок (4) эту задачу можно упростить.

1. Толщину пленки можно определить непосредственно из измерений коэффициента отражения  $R(\lambda, d)$  в момент времени  $t_0$ , численно решая (относительно  $d_0$ ) уравнение

$$[R_{meas}(t_0) - R_{mod}(t_0, d_0, d_1, d_2)]^2 \rightarrow \min, \quad (8)$$

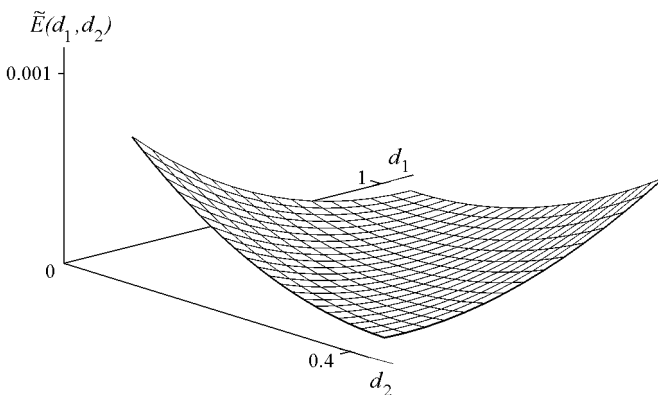
где  $R_{meas}(t_0)$  — измеренное значение коэффициента отражения трехслойной системы вакуум (воздух) — пленка золота — кварцевая подложка в момент времени  $t_0$ .

2. Характеристики роста пленки (параметры  $d_1, d_2$ ) можно определить (по данным измерений в моменты времени  $t_1, \dots, t_n$ ), решая задачу поиска минимума функции невязки:

$$\tilde{E}(d_1, d_2) = \sum_{i=1}^n [R_{meas}(t_i) - R_{mod}(t_i, d_0, d_1, d_2)]^2 \rightarrow \min. \quad (9)$$

В формуле (9) стоит уже известная величина  $d_0$ , определенная из уравнения (8) по данным измерений в момент времени  $t_0$ .

Вид функции невязки  $\tilde{E}(d_1, d_2)$  для  $\lambda = 515$  нм,  $n = 3$ ,  $n_1 = 0,7191$ ,  $k_1 = 2,0225$  (пленка из золота),  $n_2 = 1,4616$ ,  $k_2 = 0$  (подложка из кварца) представлен на рис. 2 для толщины пленки  $d_0 = 30$  нм.



**Рис. 2.** График функции невязки  $\tilde{E}(d_1, d_2)$

Для проверки работоспособности и оценки эффективности разработанного метода измерения толщины и показателя преломления пленки было проведено математическое моделирование. Для поиска минимума функции невязки  $\tilde{E}(d_1, d_2)$  использовались метод перебора и метод Нелдера — Мида [11, 12].

Длина волны излучения принималась  $\lambda = 515$  нм (наилучшая с точки зрения минимизации погрешности  $\delta$  для диапазона измеряемых толщин 5...50 нм [7]). Моделирование проводилось для пленки и подложки со следующими оптическими характеристиками:  $n_1 = 0,7191$ ,  $k_1 = 2,0225$ ,  $n_2 = 1,4616$ ,  $k_2 = 0$  и для модели (4) роста пленки. Число измерений  $n = 4$ , интервал между измерениями 1 с.

Область поиска по начальной толщине  $d_0$  пленки 5...50 нм, по параметру  $d_1$  — 0,1...1,0 нм/с, по параметру  $d_2$  — 0,05...0,40 нм/с<sup>2</sup>. Относительная среднеквадратическая погрешность измерения коэффициентов отражения принималась равной 1 %, закон распределения погрешностей нормальный.

При математическом моделировании исследовались погрешности определения толщины пленки  $\delta = \frac{d_0 - d_{0\text{изм}}}{d_0}$  и характеристик роста

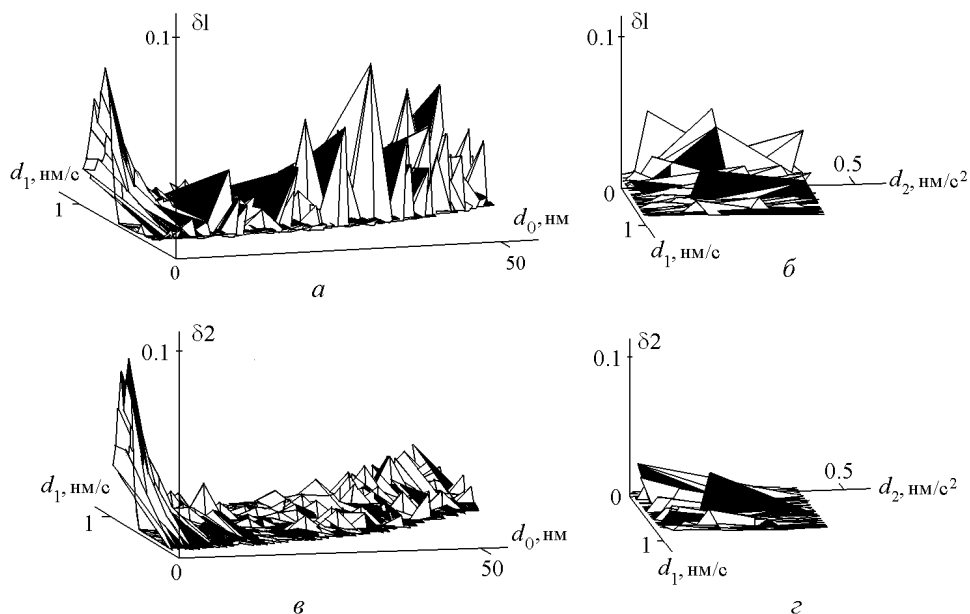
пленки  $\delta_1 = \frac{d_1 - d_{1\text{изм}}}{d_1}$ ,  $\delta_2 = \frac{d_2 - d_{2\text{изм}}}{d_2}$ , где  $d_0$ ,  $d_1$ ,  $d_2$  — заданные

при моделировании значения;  $d_{0\text{изм}}$ ,  $d_{1\text{изм}}$ ,  $d_{2\text{изм}}$  — значения, определенные по результатам лазерных рефлектометрических «измерений».

Результаты математического моделирования показывают, что средняя по диапазону 5...50 нм среднеквадратическая (по  $10^4$  реализаций) погрешность  $\delta$  определения начальной толщины пленки  $d_0$

(методом перебора непосредственно из измерений коэффициента отражения  $R(\lambda, d)$  в момент времени  $t_0$ ) составляет  $\sim 0,00315$  (0,315 %), а максимальная по этому же диапазону среднеквадратическая погрешность равна  $\sim 0,00533$  (0,533 %).

На рис. 3 представлены относительные среднеквадратические (по 500 реализациям) погрешности  $\delta 1$  (в относительных единицах) определения параметра роста пленки  $d_1$  (рис. 3, *a*, *б*) и погрешности  $\delta 2$  определения параметра роста пленки  $d_2$  (рис. 3, *в*, *г*).



**Рис. 3.** Зависимость среднеквадратической погрешности  $\delta 1$  от  $d_0$  и  $d_1$  (*a*),  $d_1$  и  $d_2$  (*б*) и погрешности  $\delta 2$  от  $d_0$  и  $d_1$  (*в*) и  $d_1$  и  $d_2$  (*г*)

Параметры роста пленки  $d_1$ ,  $d_2$  определялись из решения уравнения (9) при использовании метода Нелдера — Мида (метод перебора дает близкие значения среднеквадратических погрешностей, но требует гораздо большего времени счета) для  $d_2 = 0,25$   $\text{nm}/\text{c}^2$  (см. рис. 3, *a*, *в*) и  $d_0 = 30$   $\text{nm}$  (см. рис. 3, *б*, *г*).

Среднее значение  $\delta 1$  по всему диапазону значений  $d_0$ ,  $d_1$  составляет 0,00829 (0,829 %), а максимальное — 0,0791 (7,91 %) (см. рис. 3, *a*), по всему диапазону значений  $d_1$ ,  $d_2$  — 0,00663 (0,663 %), а максимальное — 0,0518 (5,18 %) (см. рис. 3, *б*).

Среднее значение  $\delta 2$  по всему диапазону значений  $d_0$ ,  $d_1$  составляет 0,0093 (0,93 %), а максимальное — 0,0818 (8,18 %) (см.

рис. 3, в), по всему диапазону значений  $d_1$ ,  $d_2$  — 0,00772 (0,772 %), а максимальное — 0,0377 (3,77 %) (см. рис. 3, з).

Таким образом, согласно результатам математического моделирования, лазерный рефлектометрический метод позволяет для пленок золота на кварцевой подложке определять толщину пленки  $d_0$  со среднеквадратической погрешностью, меньшей  $\sim 0,5$  %, а параметры роста пленки  $d_1$  и  $d_2$  — со среднеквадратической погрешностью, меньшей  $\sim 8$  %, в диапазоне толщин пленок 5...50 нм при погрешностях измерения коэффициента отражения пленки 1 %.

*Работа поддержана грантом РФФИ 11-02-12283-офи-м-2011.*

## СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Наноструктурированные метаматериалы. Получение и характеристика / К.В. Шульга, И.А. Черных, Ю.В. Грищенко, В.В. Роддатис // VII Международная научно-техническая конференция INTERMATIC – 2010 (Москва, 23–27 ноября 2010 г.). – Ч. 2. – М.:МИРЭА, – 2010. – С. 11–12.
2. Laser reflectometry in situ measurement of lead zirconate titanate film growth / Y. Beaudoin, M. Chaker, T.W. Johnston, H. Pepin // Applied optics. – 1997. – Vol. 36. – No. 3. – P. 655–657.
3. Babeva T., Kitova S., Konstantinov I. Photometric methods for determining the optical constants and the thicknesses of thin absorbing films: criteria for precise and unambiguous determination of n, k, and d in a wide spectral range // Applied Optics. – 2001. – Vol. 40. – No. 16. – P. 2682–2686.
4. Real time, in situ measurement of film thickness with Reflexion Supported Pyrometric Interferometry (RSPI) / F.G. Boebel, B. Hertel, H. Moeller, W. Preiss // IEEE/SEMI Advanced Semiconductor Manufacturing Conference. – 1994. – P.311–314.
5. Farrell T., Armstrong J. V., Kightley P. Dynamic optical reflectivity to monitor the real-time metalorganic molecular beam epitaxial growth of AlGaAs AlGaAs layers // Appl. Phys. Lett. – 1991. – Vol. 59. – No. 10. – P. 1203–1205.
6. Rabadi R., Zinoviev K., Avrursky I. High-resolution photometric optical monitoring for thin-film deposition // Applied Optics. – 2004. – Vol. 43. – No. 1. – P. 143–148.
7. Лазерный рефлектометрический метод измерения толщины нанопленок золота на кварцевой подложке / В.А. Городничев, М.Л. Белов, А.М. Белов, С.В. Березин, Ю.В. Федотов // Наука и образование. МГТУ им. Н.Э. Баумана. Электрон. журн. – 2012. – № 3. Режим доступа: <http://technomag.edu.ru/doc/326698.html> (дата обращения 20.06.2012).
8. Бреховских Л. М. Волны в слоистых средах. – М.: Наука, 1973. – 342 с.



9. Воскобойников Ю. Э., Преображенский Н. Г., Седельников А. Н. Математическая обработка эксперимента в молекулярной газодинамике. – Новосибирск: Наука, 1984. – 238 с.
10. Тихонов А. Н., Арсенин В. Я. Методы решения некорректных задач. – М.: Наука, 1979. – 288 с.
11. Губарь Ю. В. Введение в математическое программирование. Режим доступа: <http://www.intuit.ru/department/mathematics/mathprog/10/2.html> (дата обращения 20.06.2012).
12. Банди Б. Методы оптимизации. Вводный курс. – М.: Радио и связь, 1988. – 128 с.

Статья поступила в редакцию 26.09.2012