

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

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 λ .

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

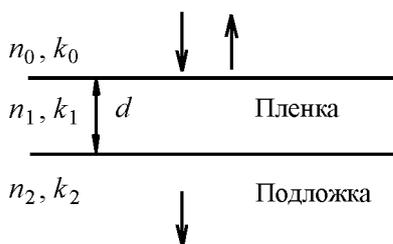


Рис. 1. Схема измерения

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 λ 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 λ ; n_2 , k_2 — показатели преломления и поглощения кварцевой подложки на длине волны λ .

Отраженное излучение регистрируется приемником измерителя. Регистрируемая мощность на длине волны λ (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 λ ; $K(\lambda)$ — пропускание приемной оптической системы на длине волны λ .

Отсюда коэффициент отражения на длине волны λ

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

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

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 ρ 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.

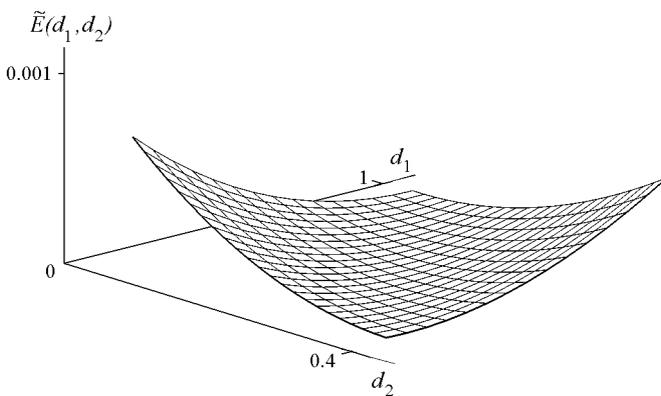


Рис. 2. График функции невязки $\tilde{E}(d_1, d_2)$

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 δ 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/с². 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 δ 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*).

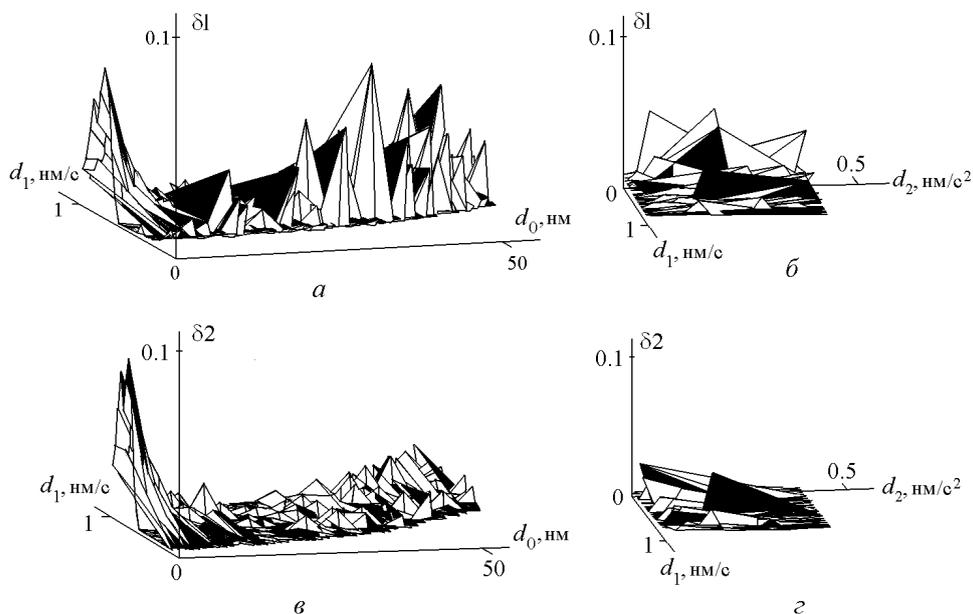


Рис. 3. Зависимость среднеквадратической погрешности $\delta 1$ от d_0 и d_1 (*a*), d_1 и d_2 (*б*) и погрешности $\delta 2$ от d_0 и d_1 (*в*) и d_1 и d_2 (*г*)

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 $d_2 = 0,25$ nm/c^2 (см. рис. 3, *a*, *в*) и $d_0 = 30$ 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, г).

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 ~ 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