

07;11;12

## Эллипсометрическая экспресс-методика определения толщины и профилей оптических постоянных в процессе роста наноструктур Fe/SiO<sub>2</sub>/Si(100)

© И.А. Тарасов,<sup>1,2</sup> Н.Н. Косырев,<sup>1,2</sup> С.Н. Варнаков,<sup>1,2</sup> С.Г. Овчинников,<sup>1</sup> С.М. Жарков,<sup>1,4</sup>  
В.А. Швец,<sup>3,5</sup> С.Г. Бондаренко,<sup>1</sup> О.Е. Терещенко<sup>3</sup>

<sup>1</sup> Институт физики им. Л.В. Киренского СО РАН,  
660036 Красноярск, Россия

<sup>2</sup> Сибирский государственный аэрокосмический университет им. академика М.Ф. Решетнева,  
660014 Красноярск, Россия

<sup>3</sup> Институт физики полупроводников СО РАН,  
630090 Новосибирск, Россия

<sup>4</sup> Сибирский федеральный университет,  
660041 Красноярск, Россия

<sup>5</sup> Новосибирский государственный университет,  
630090 Новосибирск, Россия

e-mail: tia@iph.krasn.ru

(Поступило в Редакцию 4 октября 2011 г.)

Разработан и реализован алгоритм, позволяющий проводить экспресс-контроль толщины и оптических постоянных структур в процессе роста. Проведена апробация алгоритма на структурах Fe/SiO<sub>2</sub>/Si(100), полученных в установке молекулярно-лучевой эпитаксии „Ангара“. Значения толщин пленок, рассчитанные в ходе их роста, сравнены с данными рентгеноспектрального флуоресцентного анализа и просвечивающей электронной микроскопии.

В последние годы наблюдается повышенный интерес к исследованиям тонких пленок магнитных металлов на полупроводниковых подложках, что обусловлено новыми физическими свойствами этих структур и перспективой их использования в устройствах спинтроники [1–3]. Толщины формируемых пленок в данных работах варьируются от долей до десятков нанометров. Обычно технологические параметры роста выбираются посредством предварительных калибровок, которые могут значительно изменяться в процессе роста. В связи с этим существует необходимость контроля толщины отдельных слоев структуры в процессе их формирования.

Из известных экспериментальных методик, позволяющих *in situ* вести контроль толщины в процессе роста, можно выделить наиболее широко используемые: измерение толщины на основе разности биений кварцевых резонаторов, дифракцию отраженных быстрых электронов, а также эллипсометрию. Для получения достоверной толщины формируемых пленок с помощью кварцевых резонаторов необходимо располагать кварцевые датчики максимально близко к области синтеза и обеспечивать их термостабильность, что требует дополнительного усложнения в технике эксперимента, также данный способ анализа неудобен при формировании многокомпонентных систем. Метод дифракции быстрых электронов позволяет рассчитать толщину покрытия по осцилляциям зеркального рефлекса при послойном росте эпитаксиальных пленок [4], но при формировании поликристаллических и аморфных структур измерение толщины данным методом невозможно.

Среди указанных методов эллипсометрия является чувствительным методом, позволяющим практически непрерывно получать информацию о процессах, происходящих на поверхности образца *in situ*, не оказывая влияния на растущую структуру. Помимо толщины из результатов эллипсометрического эксперимента можно получать информацию об оптических свойствах, в частности, определять профили оптических постоянных по толщине неоднородного слоя [5–9]. С появлением быстродействующих эллипсометров, которые могут обеспечивать практически непрерывный поток эллипсометрических данных, измеренных в процессе роста, появились и новые возможности для решения обратной задачи эллипсометрии неразрушающим методом. Такая задача достаточно просто решается, когда известна зависимость эллипсометрических параметров по толщине [8]. Однако в реальном эксперименте эллипсометрические параметры измеряются в процессе роста как функции времени и их зависимость от толщины можно установить весьма приближенно, если каким-либо образом прокалибровать скорость роста.

В работе [9] была рассмотрена задача восстановления профилей оптических постоянных по „кривой роста“ — эллипсометрическим параметрам, измеренным в процессе роста неоднородного слоя. Был предложен алгоритм определения профилей, который демонстрировал хорошие результаты при условии малости градиента оптических постоянных:  $G = \lambda |dN/dz| \ll 1$ , где  $N = n - ik$  — комплексный показатель преломления,  $\lambda$  — длина волны. Этот алгоритм основан на использо-

вании относительных производных эллипсометрических параметров, определяемых экспериментально по кривой роста при высокой плотности измеренных точек. При обратном выполнении этого неравенства  $G \gg 1$  задача не имеет, вообще говоря, однозначного решения. Физическая причина неоднозначности заключается в том, что с возрастанием градиента оптических постоянных возрастает также роль интерференции при формировании эллипсометрического отклика.

Таким образом, при интерпретации эллипсометрических данных возникают сложности при решении обратной задачи [10], т. е. в выборе адекватной оптической модели сформированной структуры, которая бы описывала с приемлемой точностью реальный образец [11].

Однако для предварительной интерпретации экспериментальных данных непосредственно в процессе роста иногда достаточно использовать алгоритм с простой оптической моделью, позволяющий в реальном времени оценивать с заданной точностью толщину и оптические постоянные синтезируемой пленки. В настоящей работе сделана попытка реализовать такую экспресс-методику, позволяющую вести контроль физических характеристик структуры в ходе эксперимента.

При эллипсометрических измерениях определяется отношение комплексных коэффициентов отражения  $R_p, R_s$

$$\rho = \frac{R_p}{R_s} = \text{tg } \psi e^{i\Delta}, \quad (1)$$

где

$$\text{tg } \psi = \frac{|R_p|}{|R_s|},$$

$$\Delta = \arg \frac{R_p}{R_s}.$$

Углы  $\psi$  и  $\Delta$  называются эллипсометрическими параметрами отражающей системы и являются величинами, измеряемыми в процессе эллипсометрического эксперимента. Величина  $\rho$  называется комплексным эллипсометрическим параметром. Уравнение (1) получило название основного уравнения эллипсометрии [10].

За основу экспресс-методики решения обратной задачи эллипсометрии в настоящей работе был взят итерационный численный метод Ньютона, расширенный на область комплексного переменного [12].

Если отношение коэффициентов отражения обозначить через  $g$ , то обратная задача эллипсометрии может рассматриваться как задача поиска таких значений  $N_a, N_j, \varphi, d_j, \lambda$ , для которых функция

$$f = g - \text{tg } \psi e^{i\Delta} \quad (2)$$

обращается в нуль, где

$$g = \frac{R_p}{R_s}. \quad (3)$$

$R_p, R_s$  — расчетные значения комплексных коэффициентов отражения для многослойной структуры,  $N_a$  —

комплексный показатель преломления среды,  $N_j, d_j$  — комплексный показатель преломления и толщина соответственно для  $j$ -го слоя,  $\varphi$  — угол падения излучения на структуру,  $\lambda$  — длина волны.

В уравнении (3) коэффициенты отражения для  $p$ - и  $s$ -компонент падающего излучения  $R_{p,s}$  могут быть найдены для любого количества слоев из рекуррентного соотношения

$$R_{j+1} = \frac{r_{j+1}(1 - r_{j+1}R_j) + (R_j - r_{j+1})X_{j+1}}{1 - r_{j+1}R_j + r_{j+1}(R_j - r_{j+1})X_{j+1}}, \quad (4)$$

где

$$X_{j+1} = e^{-2i\delta_{j+1}}, \quad \delta_{j+1} = 2\pi \frac{d_{j+1}}{\lambda} \sqrt{N_{j+1}^2 - \sin^2 \varphi}. \quad (5)$$

В уравнении (4)  $r_{j+1}$  — коэффициенты Френеля для  $j + 1$ -го слоя, приведенные к внешней среде,  $X_{j+1}$  — экспоненциальная функция фазовой толщины для  $j + 1$ -го слоя.

С использованием данной функции был разработан алгоритм, позволяющий проводить мониторинг роста структуры Fe/SiO<sub>2</sub>/Si(100) с вычислением в режиме реального времени  $d_{\text{Fe}}, n_{\text{Fe}}, k_{\text{Fe}}$  для каждой пары значений экспериментально полученных  $\psi$  и  $\Delta$ .

В методе Ньютона, если известно приближенное значение корня  $x_0$  функции  $f(x)$ , то более точное значение  $x_1$  определяется как

$$x_1 = x_0 - \frac{f(x_0)}{|df/dx|_{x=x_0}}. \quad (6)$$

Согласно этому в данном алгоритме более точное значение толщины пленки железа

$$d_1 = d_0 - \frac{f(d_0)}{|df/dd|_{d=d_0}}, \quad (7)$$

где индекс при  $d$  — номер приближения.

В процессе роста пленки измеряется массив эллипсометрических углов  $\psi$  и  $\Delta$ . Алгоритм вычисления профилей оптических постоянных построен следующим образом. Из массива выбирается первая пара значений  $\psi$  и  $\Delta$ , для которой задается первое приближение определяемой величины, в данном случае это  $d$ . В зависимости от напыляемого вещества задаются известные в литературе значения оптических параметров пленки [13], затем производится расчет отношений коэффициентов отражения для нулевого приближения. Задается условие окончания итераций поиска корня

$$|d_{k+1} - d_k| < \varepsilon \implies d^{(*)} \approx d_{k+1}, \quad k = 0, 1, 2, 3 \dots n, \quad (8)$$

где  $d^{(*)}$  — корень уравнения (1). И далее выбирается корень, соответствующий минимальному значению модуля комплексной функции  $f$ . Данный факт — главное отличие от метода Ньютона [12], в котором корнем будет значение  $d_{k+1}$ .

Затем для полученного значения толщины рассчитывается показатель преломления  $n$ , далее для новых  $d$  и  $n$  вычисляется показатель поглощения  $k$ . Полученные корни  $d, n, k$  являются нулевым приближением для следующей пары экспериментальных значений:  $\psi$  и  $\Delta$ . Расчет продолжается по данной схеме до тех пор, пока не будут рассчитаны  $d, n, k$  для каждой пары  $\psi$  и  $\Delta$ . По полученным значениям  $d, n, k$  рассчитываются теоретические  $\psi$  и  $\Delta$ , функция минимизации находится по известной формуле [10]:

$$\sigma = \frac{1}{M} \left\{ \sum_{j=1}^M \left( (\Delta_{\text{ex}}^j - \Delta_{\text{calc}}^j)^2 + (\psi_{\text{ex}}^j - \psi_{\text{calc}}^j)^2 \right) \right\}. \quad (9)$$

По окончании расчетов полученные результаты представляются в графическом виде.

Для проверки разработанных алгоритмов был проведен численный эксперимент, где был смоделирован рост пленки с изменяющимися оптическими параметрами. Зависимости показателей преломления и поглощения от толщины модельной структуры в процессе ее „роста“ задавались в произвольной форме. Затем решалась прямая задача и рассчитывались зависимости эллипсометрических параметров  $\psi$  и  $\Delta$  от времени „роста“. Далее с помощью разработанного алгоритма были восстановлены профили  $n$  и  $k$  (рис. 1) и зависимость толщины пленки от времени „роста“ (рис. 2). После анализа полученных данных оказалось, что при использовании разработанного алгоритма ошибка определения толщины не превышает нескольких процентов. Однако следует заметить, что восстановленные профили показателей преломления и поглощения только качественно отражают зависимость исходных профилей по толщине. В процессе формирования структур на распределение оптических постоянных влияют структурные характеристики, дефектность растущих слоев, наличие инородных включений и другие факторы. Поэтому во время роста в режиме реального времени представляет ценность восстановление скорее не точного вида профиля, а качественного распределения оптических постоянных по толщине.

Экспериментальная апробация экспресс-методики определения оптических параметров и толщины была выполнена на серии тонкопленочных структур Fe/SiO<sub>2</sub> на подложках монокристаллического кремния Si(100) с различными толщинами диоксида кремния и железа. Напыление пленок железа осуществлялось методом термического испарения в сверхвысоковакуумной камере комплекса „Ангара“ [14] при комнатной температуре подложки. Эллипсометрические измерения проводились с помощью лазерного эллипсометра ЛЭФ-751М [15].

Расчет проводился с использованием двуслойной модели, где первым слоем является диоксид кремния SiO<sub>2</sub>, толщина которого рассчитывалась по эллипсометрическим данным, полученным до начала напыления, с использованием известных из литературы данных для

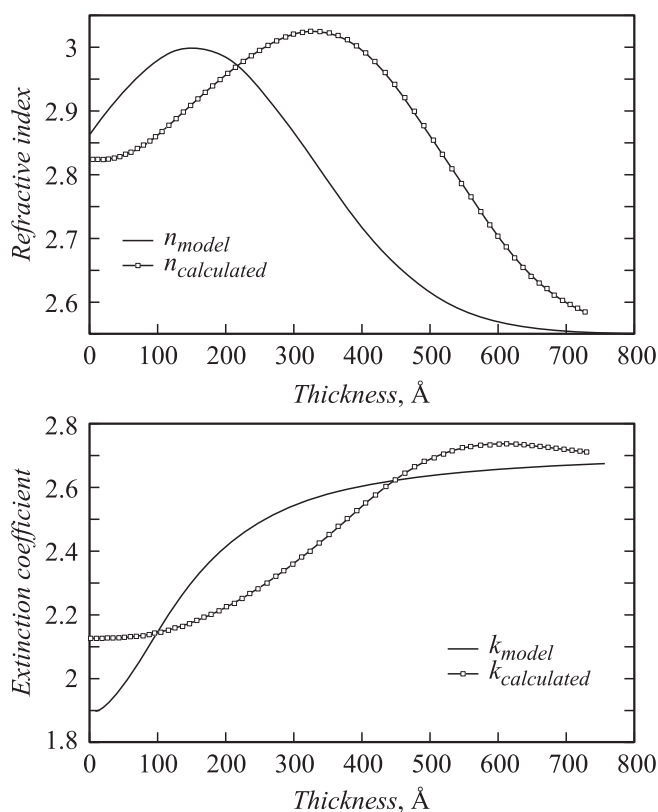


Рис. 1. Модельные и восстановленные профили оптических постоянных „растущей“ пленки при численном эксперименте.

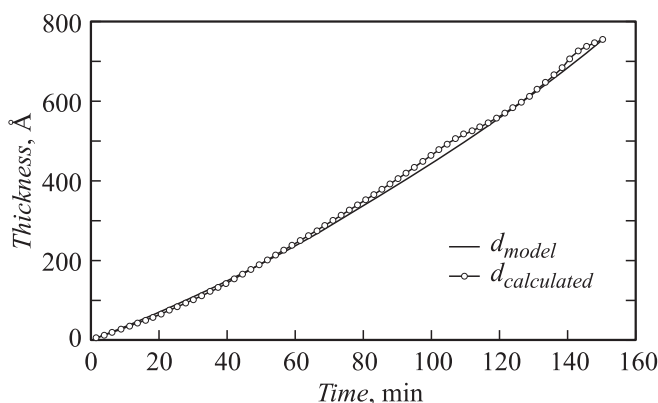


Рис. 2. Исходная и восстановленная зависимости толщины модельной пленки от времени „роста“.

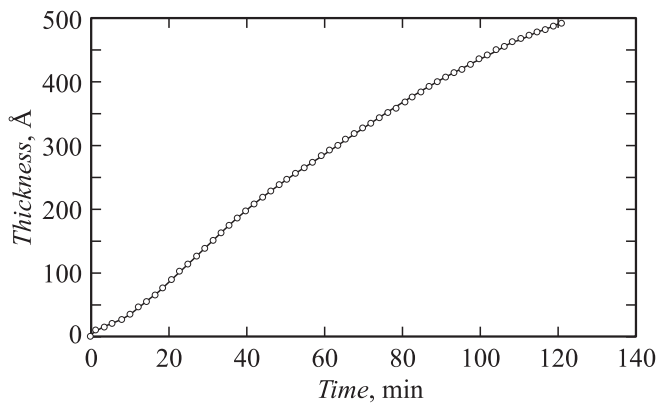
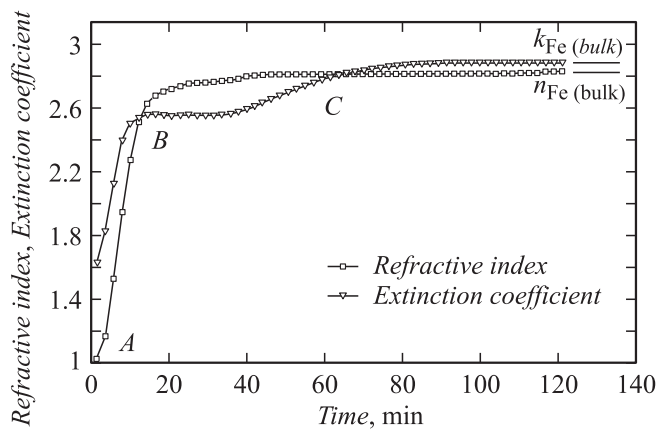
диоксида кремния  $n_{\text{SiO}_2} = 1.456$ ,  $k_{\text{SiO}_2} = 0$  [16]. Второй слой — формируемая пленка железа, для которой велся расчет параметров  $d_{\text{Fe}}$ ,  $n_{\text{Fe}}$ ,  $k_{\text{Fe}}$ . Показатели преломления и поглощения подложки кремния Si(100) составляли соответственно  $n_{\text{Si}} = 3.865$  и  $k_{\text{Si}} = 0.023$ .

Результаты расчета по предложенной методике для образца Fe/SiO<sub>2</sub>/Si(100) представлены на рис. 3. Вычисленное значение толщины пленки Fe составляет 490 Å, что хорошо согласуется с данными рентгеноспектрального флуоресцентного анализа РСФА [17] ( $d_{\text{Fe}} = 492$  Å).

Расчетные величины оптических констант  $n_{Fe} = 2.82$ ,  $k_{Fe} = 2.86$  для сформированной пленки Fe отличаются не более чем на 2% от показателей преломления и поглощения для объемного Fe, полученных другими авторами [13].

График изменения оптических постоянных (рис. 3) условно можно разделить на три характерные области. На участке *AB* можно наблюдать резкое возрастание оптических показателей пленки Fe. В данном случае мы имеем дело с островковым ростом поликристаллического железа [18], и зондирующий пучок, отражаясь от поверхности в данной области, несет в себе информацию об отражении как от образованных осаждаемым веществом островков, так и от поверхности самой подложки. Это продолжается до момента образования однородного слоя железа. Таким образом, точка *B* (толщина Fe  $\sim 50 \text{ \AA}$ ) может соответствовать образованию однородного слоя железа.

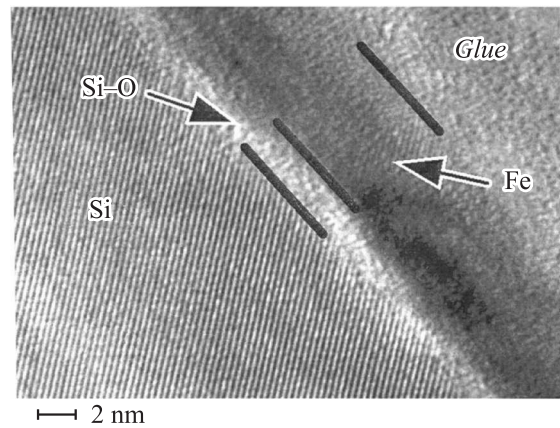
Участок *BC* соответствует росту однородной пленки железа, причем влияние подложки  $\text{SiO}_2/\text{Si}(100)$  на определяемое значение показателя преломления и поглощения структуры существенно. В точке *C* (толщина Fe  $\sim 370 \text{ \AA}$ ) данное влияние снижается, в связи с большим поглощением в железе, и показатели преломления и поглощения выходят на значение объемного Fe, не изменяющееся в процессе дальнейшего роста.



**Рис. 3.** Контроль изменения показателей преломления  $n$  и поглощения  $k$  и толщины  $d$  в процессе роста пленки Fe.

Сравнение расчетных толщин с данными РСФА

№ образца	Расчитанная толщина $d$ , $\text{\AA}$	Функция минимизации $\sigma \cdot 10^{-3}$	Толщина Fe РСФА $d_{Fe}$ , $\text{\AA}$
1	490	1.41	492
2	142	1.90	146
3	113	2.61	113
4	67	0.24	65
5	52	0.25	50
6	58	0.31	55
7	25	3.90	22



**Рис. 4.** Электронно-микроскопическое изображение поперечного среза образца № 5.

Результаты расчетов толщин пленок железа в сравнении с результатами РСФА сведены в таблицу. Анализ полученных данных (см. таблицу) позволяет говорить о том, что с учетом погрешностей измерений методами РСФА и эллипсометрии значения толщин Fe совпадают.

Для подтверждения данных, полученных методом РСФА, проведены электронно-микроскопические исследования (рис. 4) поперечного среза образца № 5. Толщина аморфного слоя  $\text{SiO}_2$  составила  $15 \text{ \AA}$ , слоя Fe —  $50 \text{ \AA}$ , что в пределах ошибки измерений также совпадает с данными РСФА (см. таблицу).

Таким образом, была реализована экспресс-методика определения оптических характеристик и толщины пленок железа по данным одноволновой эллипсометрии, причем быстрое действие алгоритмов позволяет получать физические параметры растущей пленки в реальном времени. Следует отметить, что вышеописанный метод является чувствительным к первому приближению оптических констант, задаваемому в начале расчетов.

Работа выполнена при поддержке Интеграционного проекта СО РАН-ДВО РАН № 22, Программы Президиума РАН № 27, Федеральной целевой программы „Научные и научно-педагогические кадры инновационной России 2009–2013 г.“, программы ОФН РАН № 4 „Спинтроника“.

## Список литературы

- [1] Гомоюнова М.В., Гребенюк Г.С., Пронин И.И. и др. // ФТТ. 2011. Т. 53. Вып. 3. С. 564–568.
- [2] Naik S.R., Rai S. et al. // J. Phys. D: Appl. Phys. 2008. Vol. 41. P. 115 307 (6p).
- [3] Varnakov S.N., Ovchinnikov S.G., Bartolomé J. et al. // J. Sol. Stat. Phenomena. 2011. Vol. 168–169. P. 277–280.
- [4] Oura K., Lifshits V.G., Saranin A.A. et al. Surface Science An Introduction. Berlin. Springer-Verlag: Berlin Heidelberg, 2003. 489 p.
- [5] Charmet J.C., de Gennes P.G. // J. Opt. Soc. Am. 1983. V. 73. N 12. P. 1777–1784.
- [6] Швец В.А., Прокопьев В.Ю., Чикичев С.И., Аульченко Н.А. // Автометрия. 2007. Т. 43. № 5. С. 71–80.
- [7] Chen T.P., Liu Y., Tse M.S., Ho P.F., Dong G., Fung S. // Appl. Phys. Lett. 2002. Vol. 81. N 25. P. 4724–4726.
- [8] Дагман Э.Е., Любинская Р.И., Мардежов А.С., Свиташев К.К., Семененко А.И., Швец В.А. // Укр. физ. журн. 1984. Т. 29. № 2. С. 187–193.
- [9] Швец В.А. // Автометрия. 1993. № 6. С. 25–33.
- [10] Azzam R.M.A., Bashara N.M. Ellipsometry and polarized light. NY: North Holland Publishing Company, 1977. 583 p.
- [11] Косырев Н.Н., Заблуда В.Н., Варнаков С.Н. и др. // ЖСХ. 2010. Т. 51. С. 104–108.
- [12] Mathews J.H., Fink K.D. Numerical methods. Using Matlab. Jersey.: Prentice Hall, 2001. 715 p.
- [13] Johnson P.B., Christy R.W. // Phys. Rev. B. 1974. Vol. 9. N. 12. P. 5056–5070.
- [14] Варнаков С.Н., Лепешев А.А., Овчинников С.Г. и др. // ПТЭ. 2004. № 6. С. 125–129.
- [15] Пат. РФ 2302623 Эллисометр. / Спесивцев Е.В., Рыхлицкий С.В., Швец В.А. Бюл. № 19.
- [16] Handbook of Optical Constants of Solids / Ed by E.D. Palik. Elsevier, 1998. 519 p.
- [17] Бондаренко Г.В. // Препринт ИФСО-16Ф. Красноярск, 1974. С. 40.
- [18] Варнаков С.Н., Яковлев И.А., Лященко С.А. и др. // Вестник СибГАУ. 2010. Т. 30. С. 45–51.