

Границы раздела слоев и шероховатость в многослойной кремниевой структуре

© А.И. Беляева[¶], А.А. Галуза, С.Н. Коломиец

Национальный технический университет „Харьковский политехнический институт“,
61002 Харьков, Украина

(Получена 4 декабря 2003 г. Принята к печати 8 января 2004 г.)

Приведены результаты спектральных эллипсометрических исследований сложной многослойной системы (подложка Si)–(слой SiO₂)–(слой поликристаллического Si). Предложена методика анализа многослойной структуры, основанная на сильной зависимости экспериментальных данных спектральной эллипсометрии от глубины проникновения зондирующего излучения при различных длинах волн видимого диапазона. Определена реальная структура системы и параметры слоев. Обработка эллипсометрических данных дала возможность обнаружить естественный шероховатый поверхностный окисный слой SiO₂, а также переходный слой на границе раздела (слой поликристаллического Si)–(слой естественного окисла), определены их состав и толщина. Показано, что осажденный слой Si представляет собой смесь кристаллической и аморфной фаз, найдено их процентное содержание.

1. Введение

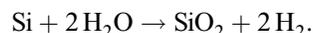
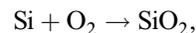
Интерес к многослойным покрытиям на базе кремния в настоящее время связан прежде всего с развитием нанотехнологий, которые составляют основу современной микроэлектроники. С другой стороны, необходимость совершенствования фундаментальных представлений о реальной структуре сложных многослойных систем, о природе поверхностных и переходных слоев и их влиянии на свойства системы в целом сомнений не вызывает. Кристаллический кремний (*c*-Si) — основной материал современной микроэлектроники. Многослойные тонкопленочные структуры, содержащие кремниевые слои, широко используются в интегральной электронике [1], в частности, для производства интегральных микросхем и жидкокристаллических (ЖК) мониторов. Исследование природы переходных слоев и их влияние на оптические и прочие свойства многослойных твердотельных структур чрезвычайно нужны для совершенствования их современной технологии. Систематические данные в этой области в настоящее время отсутствуют. Все перечисленное послужило толчком к выбору направления работы, целью которой явилось выяснение природы поверхностных и переходных слоев в сложной многослойной системе *c*-Si–SiO₂–Si-пленка, которая относится к индустрии ЖК мониторов.

2. Особенности технологии создания системы *c*-Si–SiO₂–Si-пленка

Обычно для формирования тонкопленочных транзисторов на поверхность стеклянной подложки наносят слой аморфного кремния (*a*-Si). Очень заманчиво выглядит идея разместить там и управляющие микросхемы. К сожалению, в аморфной фазе кремний не обладает необходимыми качествами для формирования сложных

логических схем. Компромиссом между аморфным и кристаллическим кремнием является поликристаллический кремний, формирование которого технологически существенно более простой процесс, чем выращивание монокристалла. Однако и тут существует ряд проблем. При изготовлении поликристаллического кремния в пленке формируется также и аморфная фаза, причем пропорции *c*-Si и *a*-Si существенно зависят от температуры осаждения. Исследованная в настоящей работе система относится именно к такому типу систем.

Кристаллический кремний *c*-Si используется в качестве подложек при изготовлении полупроводниковых интегральных микросхем (ИМС). После механической шлифовки и полировки на подложках из Si формируются слои. Один из основных процессов при изготовлении ИМС — окисление. Диоксид кремния SiO₂ — очень стабильный материал, который применяется в качестве маски при формировании рисунка ИМС, — выращивается в атмосфере кислорода или водяного пара по одной из реакций



В настоящее время изучению свойств и природы пограничного слоя между кристаллическим *c*-Si и его окислом (термически осажденным или естественным) уделяется особое внимание не только в связи с широким практическим использованием таких структур, но и в связи с тем, что это наиболее простая система полупроводник–окисел, которая может получить реальную фундаментальную трактовку.

Для достижения желаемых параметров микросхем необходимо достаточно точно знать такие характеристики системы, как толщины слоев и их состав, качество поверхности и границ раздела фаз. Среди материалов для микроэлектроники наибольшего внимания заслуживает система Si–SiO₂. В частности, эллипсометрические

[¶] E-mail: belyaeva@kharkov.com

измерения показали, что эффективный показатель преломления SiO_2 увеличивается с уменьшением толщины пленки, что связывалось с существованием переходной области (интерфейса) на границе Si-SiO_2 [2]. В современных устройствах толщина естественной окисной пленки SiO_2 составляет $\lesssim 5$ нм. Важность учета переходной области и ее структура в этом случае до сих пор не ясна.

В работе особое внимание уделено подложке $c\text{-Si}$. Как известно [3], оптические константы Si -подложки существенно зависят от того, каким способом поверхность подготовлена к их измерениям. Подложки представляли собой коммерческие пластины монокристалла $c\text{-Si}$ ориентации (100) p -типа проводимости с шероховатостью ~ 0.5 нм. Перед нанесением слоя SiO_2 естественный окисный слой на поверхности Si снимался кратковременным погружением в концентрированную HF.

Поликристаллические пленки Si были изготовлены методом пиролиза чистого силана ($\text{SiH}_4 \rightarrow \text{Si} + 2\text{H}_2$) в условиях CVD (chemical vapor deposition) при низком давлении (0.3 Torr) и температуре $T = 635^\circ\text{C}$ в SEMATECH AND PROMETRIX, Inc. Они осаждались на пластины кремния диаметром 150 мм, покрытые термически осажденным слоем аморфной двуокиси кремния (SiO_2) толщиной 31.1 нм. Пленки не легировались. Температура осаждения выбиралась из соображений получения большого размера зерен кристаллического $c\text{-Si}$ и уменьшения доли фазы $a\text{-Si}$ [4].

3. Экспериментальные методики

Поскольку слои, с которыми предстояло работать, имели толщину порядка единиц или десятков нанометров, в качестве основной методики исследования нами была выбрана спектральная эллипсометрия (СЭ) совместно с просвечивающей электронной микроскопией по поперечному срезу (ХТЕМ — cross-section transmission electron microscopy). Физической основой использования СЭ для количественного исследования многослойной кремниевой системы является сильная зависимость глубины проникновения зондирующего излучения от длины волны. Исследование включает моделирование рассматриваемой системы для интерпретации данных СЭ и сравнение результатов с данными ХТЕМ. Параметры поверхностной шероховатости и другие параметры структуры (толщины и состав слоев) были получены подгонкой параметров различных физически обоснованных многослойных моделей к экспериментальным эллипсометрическим спектрам. Каждый слой (поверхностный, переходный слой и слой кремния) моделировался физической смесью с использованием бруггемановской аппроксимации эффективной средой (ВЕМА) [5]. Предложена и обоснована уточненная физическая модель различных слоев.

Метод эллипсометрии основан на том факте, что при отражении от какой-либо поверхности свет меняет

состояние поляризации. Задавая состояние поляризации до отражения от образца и измеряя ее после, можно получить информацию об отражающей поверхности. Изменение эллипса поляризации может быть описано с помощью двух параметров. Как правило, для этого используются эллипсометрическими углами Ψ и Δ , которые характеризуют относительные изменения амплитуды и фазы. Эллипсометрические углы могут быть найдены экспериментально. Как известно, изменение состояния поляризации при отражении от поверхности с заданными оптическими параметрами может быть вычислено теоретически с помощью коэффициентов Френеля R_p и R_s . Основное уравнение эллипсометрии связывает эллипсометрические углы Ψ и Δ с физическими параметрами поверхности через R_p и R_s [6]:

$$\text{tg } \Psi \exp(i\Delta) = \frac{R_p}{R_s}. \quad (1)$$

Основная задача эллипсометрии состоит в нахождении оптических параметров системы, если известны экспериментальные значения эллипсометрических углов Ψ и Δ . Для того чтобы решить основную задачу эллипсометрии, необходимо выбрать адекватную модель поверхности (задать явный вид R_p и R_s) и решить основное уравнение эллипсометрии (1) в рамках выбранной модели. Существуют сравнительно простые модели — чистой поверхности и однородной однослойной пленки. Наиболее общей является многослойная модель.

Если пленка представляет собой смесь нескольких компонент, пользуются приближением эффективной среды (ВЕМА). Это приближение позволяет найти эффективный показатель преломления смеси нескольких веществ. Согласно ВЕМА, эффективный комплексный показатель преломления N такой смеси определяется выражением

$$\sum_j v_j \frac{N_j - N}{N_j + 2N} = 0, \quad \sum_j v_j = 1,$$

где $N_j = n_j - ik_j$ — комплексный показатель преломления j -й компоненты, а v_j — ее объемная доля.

Для построения физических моделей системы было выполнено исследование тех же образцов методом просвечивающей электронной микроскопии по поперечному сечению (ХТЕМ). Образцы для такого исследования были подготовлены по стандартной технологии [7]. Они разрезались, механически полировались и затем утоньшались послойной ионной полировкой (травлением). При этом поток ионов Ar^+ низкой энергии (6 кэВ) падал под малым углом ($\sim 12^\circ$) к плоскости образца. Результирующая толщина образца составила ~ 800 Å.

Измерения эллипсометрических углов проводились на оригинальной спектральной эллипсометрической установке, детально описанной ранее [8].

4. Экспериментальные результаты и моделирование поверхностного и переходного слоев пленки кремния

На рис. 1 показаны детали микроструктуры поверхностного нарушенного слоя поликристаллической пленки Si исследуемой системы. Размер зерен в поликристаллической пленке кремния составляет ~ 100 Å. Технологически изготавливалась структура \langle монокристаллическая кремниевая подложка (c -Si) \rangle – \langle пленка двуокиси кремния (SiO_2) \rangle – \langle поликристаллическая кремниевая пленка (pc -Si) \rangle . Однако результаты ХТЕМ (рис. 1) показали, что структура образца осложнена наличием существенной поверхностной шероховатости (черные стрелки) и неоднородностью по толщине слоя поликристаллического кремния (белые стрелки).

Анализ эллипсометрических спектров позволил получить дополнительную количественную информацию о составе и толщинах различных слоев исследуемой системы. На рис. 2, *a* и *b* приведены экспериментальные и рассчитанные в рамках технологической модели спектры Ψ и Δ (угол падения 70°). Видно, что экспериментальный и рассчитанный спектры различаются не только количественно, но даже качественно.

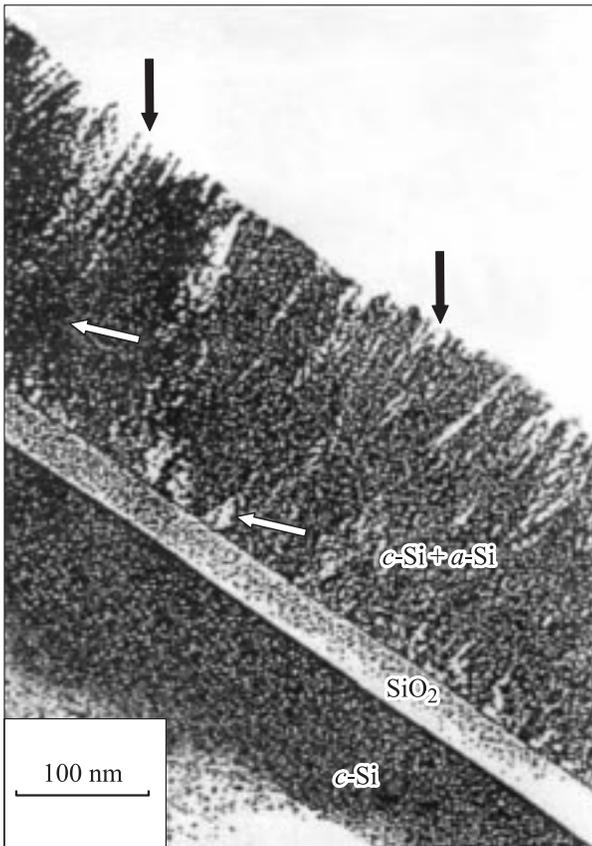


Рис. 1. Структура исследуемой системы c -Si– SiO_2 –(пленка Si) в поле электронного микроскопа (ХТЕМ).

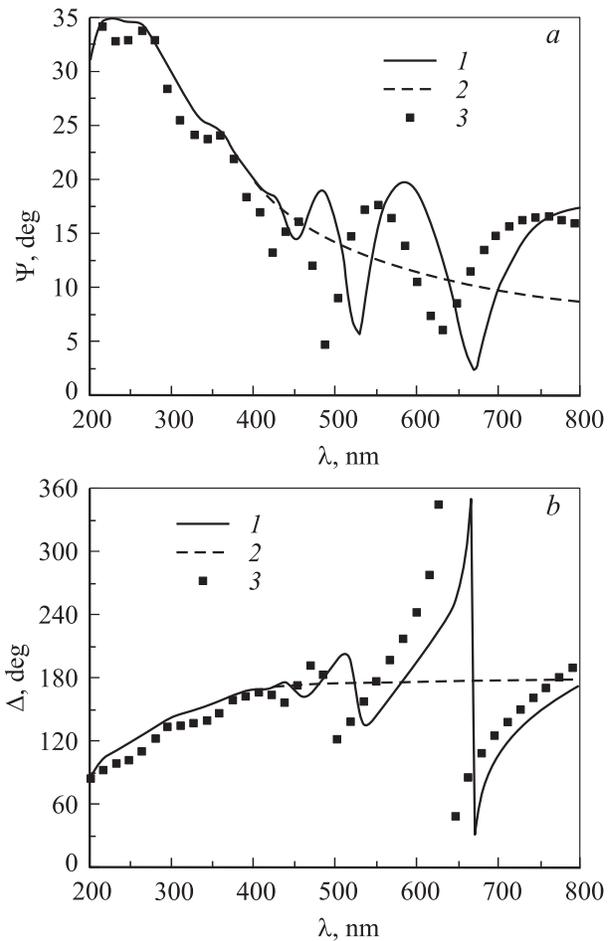


Рис. 2. Экспериментальные и модельные спектры эллипсометрических параметров Ψ (*a*) и Δ (*b*): 1 — технологическая модель; 2 — модель поверхности pc -Si; 3 — эксперимент. Спектры 1 и 2 совпадают при $\lambda < 400$ нм.

Для однозначного определения реальной модели мы пользовались прежде всего физическими соображениями и результатами ХТЕМ. Все модели содержали поликристаллический слой кремния, который моделировался как смесь аморфного и (или) кристаллического кремния (a -Si и (или) c -Si) и пустот. Физическая природа описания оптических свойств пленки кремния смесью a -Si и c -Si неоднократно обсуждалась в литературе [9] и плодотворность такого подхода в настоящее время сомнений не вызывает. В связи с этим для получения представления о кристаллической структуре пленки кремния при обработке экспериментальных результатов спектральной эллипсометрии было взято приближение ВЕМА, в котором использованы оптические параметры n и k (показатель преломления и показатель поглощения) для a -Si и c -Si, рассчитанные по известным ϵ_1 и ϵ_2 (вещественная и мнимая части диэлектрической проницаемости) [10].

Физической основой для построения моделей многослойной структуры поверхности послужил анализ

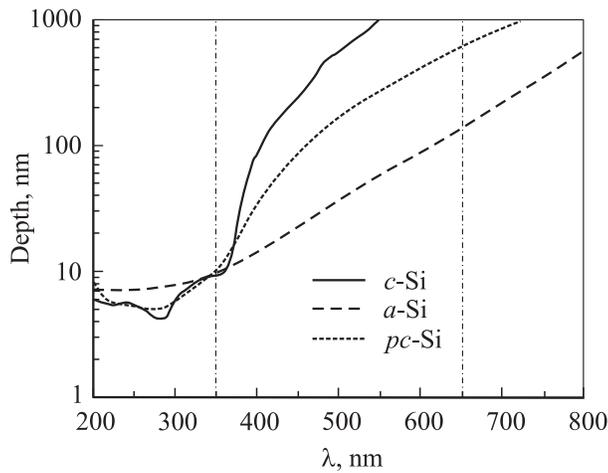


Рис. 3. Спектры глубины проникновения зондирующего излучения в монокристаллический (*c*-Si), поликристаллический (*pc*-Si) и аморфный (*a*-Si) кремний. Вертикальными линиями показаны границы выделенных спектральных интервалов.

спектра глубины проникновения излучения в образец. Термин „глубина проникновения“ требует пояснений. Для простоты рассмотрим систему (однослойная поглощающая пленка)–подложка. В этом случае нас интересует не столько вопрос, как глубоко излучение проникает в систему, сколько, скажется ли отражение от подложки на эллипсометрических параметрах Ψ и Δ . Вопрос этот нетривиальный, поскольку ответ на него зависит от оптических констант пленки и подложки, толщины пленки, угла падения, т.е. необходимо предварительно детально исследовать систему. В то же время, если параметры пленки таковы, что излучение не доходит до подложки, вклад подложки в отражение будет заведомо нулевым.

Таким образом, в случае отражательной эллипсометрии нас интересует максимальная толщина пленки, на которой отражение от подложки еще будет влиять на эллипсометрические углы Ψ и Δ . Эта величина существенно отличается от глубины, на которую излучение проникает в пленку, т.е. речь должна идти по сути не о „глубине проникновения“, а о „глубине чувствительности“. Очевидно, глубина чувствительности не может быть больше, чем глубина проникновения. Это значит, что глубина проникновения может быть использована как верхняя оценка глубины чувствительности.

Для оценки глубины проникновения h излучения в однородный полубесконечный слой вещества, как правило, используют классический подход, основанный на законе Бугера [11]:

$$h = \frac{\lambda}{4\pi k}, \quad (2)$$

где λ — длина волны излучения, k — показатель поглощения.

В нашем случае из зависимости (2) можно получить оценку максимально возможной глубины проникновения

излучения в кремниевую систему и, следовательно, построить ее эффективную модель. Поскольку, как уже отмечалось, фазовый состав пленки изначально неизвестен, глубина проникновения была исследована для трех предельных случаев, когда пленка монокристаллическая, поликристаллическая и аморфная (рис. 3). Из рисунка видно, что в области длин волн 200–350 нм для всех трех случаев глубина проникновения не превосходит 10 нм. Это значит, что в этом спектральном диапазоне наша исходная система может рассматриваться как однородная, поскольку толщина пленки составляет 200 нм.

Тем не менее моделирование показало (рис. 2), что модель однородного слоя поликристаллического кремния с однородной поверхностью плохо описывает экспериментальный спектр даже в коротковолновой области, что особенно заметно на спектре Δ . С другой стороны, при $\lambda < 400$ нм эллипсометрические спектры для поверхности *pc*-Si и для технологической системы совпадают. Отсюда следует, что глубина чувствительности для технологической системы при $\lambda < 400$ нм меньше 200 нм (толщины пленки). Из рис. 2 видно, что эллипсометрические спектры поверхности *pc*-Si — гладкие во всем спектральном диапазоне, а экспериментальные спектры образцов имеют существенно колебательный характер при $\lambda > 400$ нм. Естественно заключить, что появление колебаний в спектрах в длинноволновой области связано с увеличением глубины проникновения излучения в образец и захватом новых слоев, т.е. эти колебания есть не что иное, как результат интерференции излучения на внутренних границах. Различия же спектров в коротковолновой области свидетельствуют о том, что, во-первых, по фазовому составу пленка отлична от чистого *pc*-Si, а во-вторых, на поверхности могут существовать дополнительные слои (шероховатость, окисный слой).

Попытки описать экспериментальные спектры в модели, которая бы отличалась от технологической лишь фазовым составом пленки кремния, позволили улучшить качество аппроксимации, но не существенно. Это дало основание сделать вывод, что необходимо учитывать интерфейсные и поверхностный слои (шероховатый

Реальная структура и состав исследуемой системы

Слой	Состав	Толщина, нм
1) Шероховатый окисный	SiO ₂ 66% Пустоты 34%	3
2) Переходный	<i>a</i> -Si 15% <i>c</i> -Si 75% SiO ₂ 10%	9
3) Поликристаллический кремний	<i>a</i> -Si 14% <i>c</i> -Si 74% Пустоты 12%	188
4) Окисный	SiO ₂ 100%	31
5) Подложка	<i>c</i> -Si 100%	—

слой хорошо виден на ХТЕМ). Был рассмотрен ряд физически разумных моделей поверхностной структуры образца, и наиболее соответствующая эксперименту приведена в первой колонке таблицы.

Моделирование нарушенного слоя кремния, переходных слоев, окисного слоя и поверхностной шероховатости (по результатам СЭ) было основано на следующих соображениях. Спектр, представленный на рис. 2, был разбит на три области с учетом глубины проникновения зондирующего излучения в *a*-Si, *c*-Si и *pc*-Si (см. рис. 3): 1) область малых длин волн ($\lambda < 350$ нм), где глубина проникновения зондирующего излучения гарантированно не превышает 10 нм; 2) средняя (переходная) часть спектра ($350 < \lambda < 650$ нм); 3) длинноволновая часть спектра, в которой излучение гарантированно проникает в систему вплоть до подложки ($\lambda > 650$ нм).

Результаты СЭ в первой части спектра несут информацию лишь о приповерхностных слоях системы: естественный шероховатый окисный слой и интерфейс между поверхностным окислом и пленкой Si. Это дает возможность рассматривать систему как однослойную, что существенно уменьшает количество подгоночных параметров и делает задачу математически разрешимой.

Характер экспериментальных эллипсометрических спектров во второй области ($350 < \lambda < 650$ нм) свидетельствует о сильном влиянии интерфейсных слоев. В спектр вносят вклад также интерференционные эффекты, связанные с отражением на границе (интерфейсный слой)–(пленка Si). Здесь система физически уже становится двухслойной, но, поскольку параметры верхних слоев уже известны, она по-прежнему эквивалентна однослойной.

Анализ спектров на третьем участке ($\lambda > 650$ нм) позволил, во-первых, убедиться в отсутствии существенных переходных слоев на границах подложка–SiO₂ и SiO₂–пленка Si и, во-вторых, уточнить фазовый состав пленки Si. Толщина пленки Si полагалась известной из данных ХТЕМ и равной 200 нм.

Для согласования трех участков спектра подгонка была выполнена еще раз уже для всего спектра в целом.

В результате описанной процедуры были найдены параметры модели (первая колонка таблицы), которая наилучшим образом описывает экспериментальные данные спектральной эллипсометрии. На рис. 4 показаны спектры Ψ и Δ , рассчитанные в этой модели, и экспериментальные спектры. Качество аппроксимации таково, что экспериментальные спектры совпали с модельными с точностью $\sim 0.1^\circ$, что близко к погрешности измерений ($\pm 0.01^\circ$ для Ψ и $\pm 0.05^\circ$ для Δ [8]).

Таким образом, результирующая структура (см. таблицу) отличается от номинальной, во-первых, фазовой неоднородностью состава пленки Si, во-вторых, наличием существенного сложного окисного слоя на поверхности Si-пленки. Кроме того, сам окисный слой состоит из слоя поверхностной шероховатости и переходного слоя окисел–Si-пленка неоднородного состава.

При анализе данной системы толщины слоев и объемные доли каждого из веществ, составляющих смесь, (параметры, не зависящие от длины волны) выступали как подгоночные параметры модели. Показатели преломления n_j и показатели поглощения k_j составляющих (*a*-Si и *c*-Si) рассчитаны по известным ϵ_1 и ϵ_2 [10].

Параметры, отвечающие результирующей модели, приведены в таблице. Видно, что: 1) слой естественного окисла имеет микроскопические шероховатости на поверхности, содержащие $\sim 34\%$ пустот; 2) имеется переходный слой между окислом и слоем кремния, толщиной ~ 9 нм, в котором пустоты отсутствуют; сравнение его состава с составом слоя Si позволяет заключить, что в случае переходного слоя пустоты (12%) заполняются SiO₂ (10%); 3) слой кремния содержит большое количество как кристаллической, так и аморфной фазы, а также некоторое количество дефектов (пустот) в своей микроструктуре; 4) межфазные процессы в такой композиционной среде, как (кристаллический Si) + (поры в SiO₂), возможно, подобны процессам в композите SiO₂ + поры, т. е. в пористом кремнеземе.

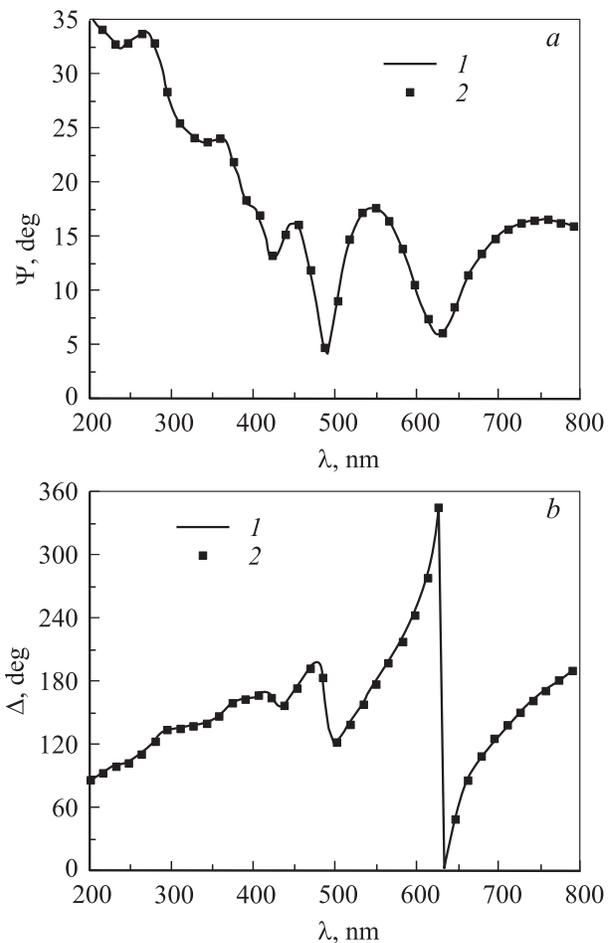


Рис. 4. Экспериментальные (1) и рассчитанные в оптимизированной модели (см. таблицу) (2) спектры эллипсометрических параметров Ψ (a) и Δ (b).

Как известно, содержание аморфного a -Si в Si-пленке существенно зависит от температуры осаждения. В этом плане полученная величина 14% для a -Si в слое кремния вполне разумна для нашей температуры осаждения $T = 635^\circ\text{C}$ [4].

Очевидно, что результаты, полученные с помощью СЭ, качественно хорошо согласуются с прямыми измерениями ХТЕМ.

5. Заключение

Совместное использование ХТЕМ, СЭ и информации о глубине проникновения излучения в образец позволило провести послойный анализ сложной структуры поликристаллического кремния. Обнаружены поверхностный и переходный слои, восстановлена их физическая природа, структура и существенная пористость. Показано, что СЭ и ВЕМА могут быть успешно использованы при моделировании и определении параметров многослойной кремниевой системы: получены составы, толщины слоев и параметры поверхностной шероховатости пленки Si и ее естественного окисла.

Используя результаты СЭ и их детальный анализ в рамках моделирования многослойной структуры оказалось возможным получить: 1) информацию о профиле многослойной структуры по глубине; 2) количественные данные о толщине каждого слоя; 3) информацию относительно структуры (кристаллической или аморфной) каждого слоя; 4) характеристику естественного окисного слоя и его шероховатости.

Все эти результаты хорошо согласуются с прямыми измерениями с использованием метода электронной микроскопии.

Список литературы

- [1] T.I. Kamins. *Polycrystalline Silicon for Integrated Circuit Applications* (Boston, Academic Publishers, 1988).
- [2] C. Zhoa, P.R. Lefevre, E.A. Irene. *Thin Sol. Films*, **313–314**, 286 (1998).
- [3] В.И. Гавриленко, А.М. Грехов, Д.В. Коробутяк, В.Г. Литовченко. *Оптические свойства полупроводников* (Киев, Наук. думка, 1987) с. 172.
- [4] A. Borghesi, M.E. Giardini, M. Marazzit. *Appl. Phys. Lett.*, **70**, 892 (1997).
- [5] D.A.G. Bruggeman. *Ann. Phys.*, **5**, 636 (1935).
- [6] Р. Аззам, Н. Башара. *Эллипсометрия и поляризованный свет* (М., Мир, 1981) с. 311.
- [7] O.W. Holland, B.R. Appleton, J. Narayan. *J. Appl. Phys.*, **54**, 2295 (1983).
- [8] A.I. Belyaeva, A.A. Galuza. *Advances in Cryogenic Engineering (Materials)*, **46A**, 435 (2000).
- [9] G.E. Jellison. *Opt. Mater.*, **1**, 41 (1992).
- [10] G.E. Jellison, M.F. Chisholm, S.M. Gorbatkin. *Appl. Phys. Lett.*, **62**, 3348 (1993).
- [11] Г.С. Ландсберг. *Оптика* (М., Наука, 1976) с. 563.

Редактор Л.В. Шаронова

Interfaces and roughness in multilayer silicon structure

A.I. Belyaeva, A.A. Galuza, S.N. Kolomiets

National Technical University
„Kharkov Polytechnical Institute“,
61002 Kharkov, Ukraine

Abstract The paper presents results of spectroellipsometric investigations of complex multilayer system (Si substrate)–(SiO₂ layer)–(polycrystal Si layer). A multilayer system analysis technique is suggested. The technique is based on experimental ellipsometric data strong dependence on probing radiation penetration depth into the sample at various wavelength. The system real structure and layers parameters are determined. Spectral ellipsometry data processing revealed native rough surface oxide layer, interface film between porous Si layer and native oxide layer. These layers parameters are estimated. It is shown that polycrystal Si layer is a mixture of crystalline and amorphous phases. Contribution of each phase is obtained.