

МЕТОДЫ И ТЕХНИКА ИЗМЕРЕНИЙ MEASUREMENT METHODS AND TECHNOLOGY

УДК 621.386

Применение двухволновой рентгенооптической схемы совместных измерений зеркального отражения и диффузного рассеяния рентгеновского излучения для исследования многослойных тонкопленочных структур

Д.И. Смирнов^{1,2}, Н.Н. Герасименко^{1,2,3}, В.В. Овчинников⁴

¹Национальный исследовательский университет «МИЭТ»

²Физический институт им. П.Н. Лебедева РАН

³Национальный исследовательский Томский государственный университет

⁴Институт электрофизики Уральского отделения РАН (г. Екатеринбург)

Application of a Two-Wave X-Ray Optical Scheme of Joint Measurement of Specular Reflection and Diffuse X-Ray Scattering for investigations of Multilayer Thin-Film Structures

D.I. Smirnov^{1,2}, N.N. Gerasimenko^{1,2,3}, V.V. Ovchinnikov⁴

¹National Research University of Electronic Technology, Moscow

²The Lebedev Physical Institute of RAS, Moscow

³National Research Tomsk State University

⁴The Institute of Electrophysics of the Ural Division of RAS, Ekaterinburg

Представлены результаты комплексного исследования параметров диффузионно-барьерных структур TiN/Ti с помощью методов относительной рентгеновской рефлектометрии и диффузного рассеяния рентгеновского излучения, реализованных на базе двухволновой рентгенооптической схемы измерений. Показано, что данная схема в рамках одного измерения обеспечивает исследование двух различных областей диффузного рассеяния, что повышает корректность и однозначность проведенного анализа. Рассмотренный комплекс методов позволяет разрешить неоднозначность типа плотность/шероховатость при решении обратной задачи рефлектометрии и рассчитать параметры скрытых слоев в исследованных структурах.

Ключевые слова: тонкопленочные наноструктуры; рентгеновская рефлектометрия; рентгеновское диффузное рассеяние; двухволновая рентгенооптическая схема.

The results of the comprehensive study on the parameters of the diffuse-barrier structures TiN/Ti by methods of relative X-ray reflectometry and diffuse X-ray scattering, based on a two-wave X-ray optical measurement scheme, have been presented. The specified X-ray optical scheme provides a study on two different areas of diffuse scattering during one measurement, which increases the accuracy and uniqueness of the analysis. It has been shown that the presented complex of methods permits to resolve the ambiguities, such as the “density – roughness” of the inverse problem of reflectometry and to calculate the parameters of the buried layers in the studied structures.

Keywords: thin-film nanostructures; X-ray reflectometry; X-ray diffuse scattering; two-wave optical scheme.

Введение. Преимущества двухволновой рентгенооптической схемы измерений для исследования зеркального отражения рентгеновского излучения на многослойных тонкопленочных структурах и использования метода относительной рефлектометрии для их анализа показаны в [1, 2]. Анализ кривых зеркального отражения позволяет построить интегральное распределение электронной плотности по глубине многослойной структуры, связанное как с изменением физической плотности материала слоя, в том числе и за счет процессов взаимодействия диффузии, так и с наличием шероховатостей и неоднородностей межслойных границ раздела. В данном случае параметр σ , рассчитываемый в рамках метода рентгеновской рефлектометрии, включает в себя информацию о среднеквадратичной шероховатости межслойной границы раздела σ_r и размере переходной области σ_g , имеющей градиентное изменение плотности материала соседних слоев: $\sigma^2 = \sigma_r^2 + \sigma_g^2$. Поэтому исследование только зеркальной составляющей рентгеновского отражения не позволяет корректно разделить вклад от указанных слагаемых при решении обратной задачи рентгеновской рефлектометрии [3, 4] (неоднозначность плотность – шероховатость). В этом случае исчерпывающую информацию о шероховатостях и кросс-корреляциях рельефа межслойных границ можно получить при исследовании диффузного рассеяния рентгеновского излучения [5]. В современных исследовательских приборах используются двухкоординатные детекторы для измерения картин незеркального отражения [6, 7]. Однако они по чувствительности и скорости счета уступают однокоординатным скантронным детекторам. Для широкого круга решаемых задач часто ограничиваются измерением одномерных профилей диффузного рассеяния.

В настоящей работе рассматривается двухволновая схема измерений для рентгеновских методов анализа наноструктур. Так, особый интерес представляет исследование диффузного рассеяния рентгеновского излучения на многослойных тонкопленочных структурах.

Методика эксперимента. Применение двухволновой рентгенооптической схемы имеет важное преимущество. При переходе в обратное пространство в рамках одного измерения снимаются два профиля диффузного рассеяния для различных значений проекций вектора рассеяния q , отличающихся на 10,8 % из-за разницы длин волн $\lambda_1(\text{CuK}_\alpha) = 0,154$ нм и $\lambda_2(\text{CuK}_\beta) = 0,139$ нм используемого рентгеновского излучения. При выборе различных режимов сканирования можно получить парные профили вдоль направлений проекций вектора рассеяния q_x и q_z .

В работе [8] для метрологического контроля многослойных структур микро- и нанoeлектроники предложен взаимодополняющий комплекс независимых методов иссле-

дования, таких как спектральная эллипсометрия, рентгеновская рефлектометрия и просвечивающая электронная микроскопия. Однако для практического применения важно создание комплекса на базе одной измерительной платформы. В частности, в данном исследовании реализован комплекс методов для многофункционального рентгеновского рефлектометра.

Зеркальное отражение и диффузное рассеяние исследовались для многослойных диффузионно-барьерных структур на основе TiN/Ti. Диффузионно-барьерные структуры TiN/Ti используются в современной микронной технологии для предотвращения паразитной диффузии в слоях многоуровневой металлизации. Образцы структур TiN/Ti/SiO₂ на кремнии изготовлены на производственной микронной линии ОАО «НИИМЭ и Микрон» (г. Москва) с проектными нормами 180 нм. Технологически заданные толщины слоев TiN – 5 нм, Ti – 10 нм, SiO₂ – 15 нм.

Титан и нитрид титана наносились на подготовленную кремниевую подложку с оксидным слоем в едином технологическом процессе в установке кластерного типа с высоким уровнем вакуума (10⁻⁸ торр). Для нанесения титана использовался метод магнетронного нанесения. В целях улучшения равномерности покрытия процесс осуществлялся в камере с источником плазмы ионизованного металла. Нитрид титана наносился методом химического осаждения из газовой фазы. В данном процессе проходило термическое разложение прекурсора TDMAT (Tetrakis-dimethylamino-titanium), после чего проводили уплотнение осажденной пленки в плазме газов N₂/H₂ с целью удаления углеродных примесей и стабилизации ее физических свойств. Как показали проведенные исследования [8], многостадийные технологические процессы приводят к формированию дополнительных неучтенных слоев в указанных структурах.

Экспериментальные измерения структур проводились на многофункциональном аналитическом рентгеновском рефлектометре CompleFlex [2]. Источником излучения служила острофокусная рентгеновская трубка с рабочей проекцией фокуса 8·0,04 мм². Для селекции спектральных линий CuK_α и CuK_β из полихроматического спектра использовался эшелон-монокроматор, представляющий собой систему из полупрозрачного и объемного кристаллов-анализаторов на основе пиролитического графита. Интенсивность в каждой угловой точке регистрировалась одновременно двумя сцинтилляционными детекторами. Двухволновая схема измерения приведена на рис. 1. Практика обработки экспериментальных данных рентгеновской рефлектометрии показала [1], что использование отношения двух длин волн позволяет минимизировать приборные погрешности и повысить точность определения параметров исследуемых структур.

Результаты и их обсуждение. Измерение рефлектометрических зависимостей проводили в режиме сканирования θ–2θ. На рис.2 представлены полученные рентгеновские рефлектограммы. Компьютерное моделирование рентгеновского отражения от многослойной структуры проводилось на основе рекуррентных соотношений [9]. Для

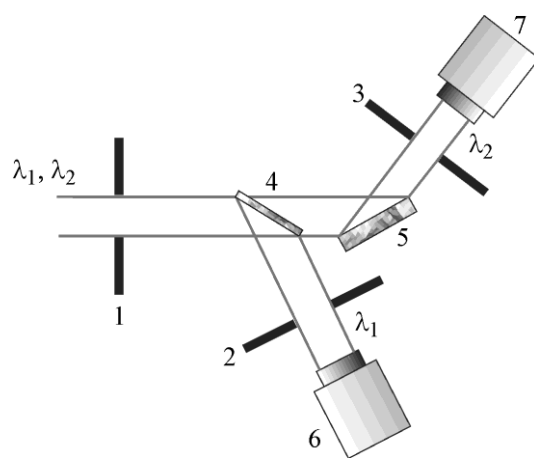


Рис.1. Двухволновая рентгенооптическая схема: 1 – приемная коллимационная щель; 2, 3 – щелевые диафрагмы детекторов; 4 – полупрозрачный монохроматор; 5 – объемный монохроматор; 6, 7 – сцинтилляционные детекторы рентгеновского излучения

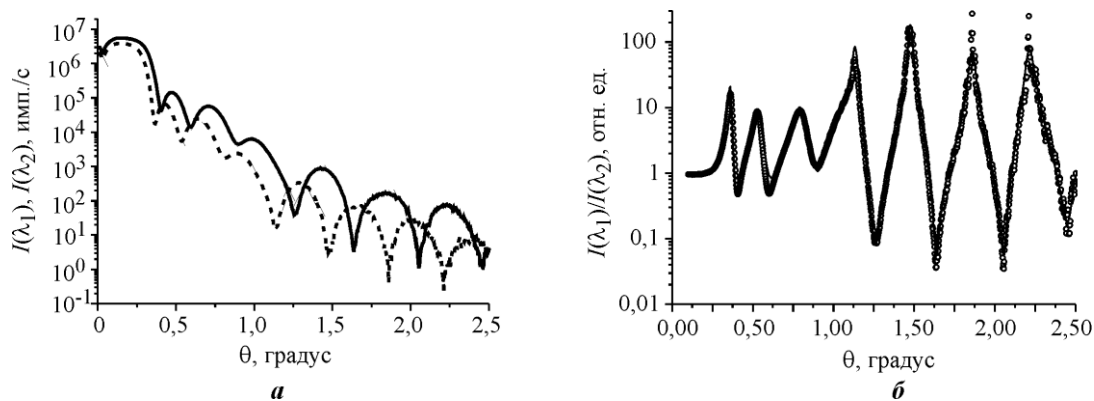


Рис.2. Угловая зависимость: *a* – интенсивностей отражения $I(\lambda_1)$ и $I(\lambda_2)$ от образца TiN/Ti для длин волн излучения $\lambda_1 = 0,154$ нм (сплошная) и $\lambda_2 = 0,139$ нм (пунктир); *б* – отношения интенсивностей отражения $I(\lambda_1)/I(\lambda_2)$ (точки – экспериментальные данные, сплошная – расчет)

обработки относительных экспериментальных зависимостей рентгеновского отражения в рамках решения обратной задачи рефлектометрии применялся генетический алгоритм [10]. Оптимизируемыми параметрами были толщина слоев, их плотность и среднеквадратичная шероховатость границ раздела. Форма экстремумов в начальной области рефлектограмм деформирована, что указывает на наличие дополнительных слоев в исследуемой структуре и/или существование неоднородного распределения оптической плотности по глубине образца.

Экспериментальные кривые диффузного рассеяния измерялись в режиме ω -сканирования при фиксированном положении детектора. Среднеквадратичные шероховатости и параметры кросс-корреляции межслойных границ рассчитывались методом диффузного рассеяния рентгеновского излучения. Диффузное рассеяние описывалось с помощью теоретических моделей на основе борновского приближения искаженных волн (DWBA) [3]. Рельеф изотропной поверхности может быть описан в терминах корреляционной функции высота–высота:

$$C(X) = \langle n(0) \cdot n(X) \rangle = \sigma_r^2 \exp\left(-\left|\frac{X}{\xi}\right|^{2h}\right),$$

где $n(X)$ соответствует точке на границе раздела с координатой X относительно нулевого уровня $n(0)$; ξ – латеральная корреляционная длина, характеризующая нерегулярность поверхности в латеральных направлениях (флуктуации высоты на масштабах менее ξ являются коррелированными и зависимыми, а на больших масштабах – случайными); h – параметр Херста, который определяет степень текстурированности и изрезанности границы раздела через фрактальную размерность поверхности $D = |3 - h|$ (при h , близком к нулю, поверхность раздела имеет экстремально развитый рельеф, а при h , стремящемся к единице, рельеф межслойных границ развит слабо).

На рис.3 представлены кривые диффузного рассеяния рентгеновского излучения для исследуемых структур (исключена зеркальная составляющая рентгеновского отражения). Измерения выполнены для положения детектора $2\theta = 0,8^\circ$. При переходе в обратное пространство измеренные зависимости представляют собой кривые, проекции векторов рассеяния которых задаются выражениями:

$$q_x = k(\cos \theta_2 - \cos \theta_1), \quad q_z = k(\sin \theta_2 + \sin \theta_1),$$

где $k = 2\pi/\lambda$ – модуль волнового вектора; θ_1 и θ_2 – углы падения и отражения.

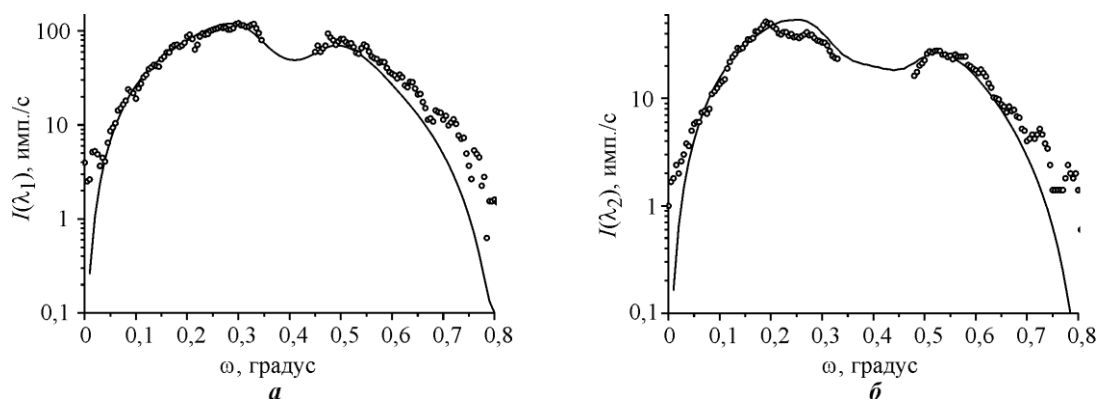


Рис.3. Кривая диффузного рассеяния рентгеновского излучения от образца TiN/Ti для длины волны излучения $\lambda_1 = 0,154$ нм (а) и $\lambda_2 = 0,139$ нм (б): точки – экспериментальные данные; сплошная – расчет

При малых углах падения и отражения полученные профили можно рассматривать как линейные (рис.4). Так, для длин волн $\lambda_1(\text{CuK}\alpha) = 0,154$ нм и $\lambda_2(\text{CuK}\beta) = 0,139$ нм и заданного положения детектора получены профили диффузного рассеяния для $q_{z1} = 0,569$ нм⁻¹ и $q_{z2} = 0,631$ нм⁻¹ соответственно.

Особый интерес представляют рентгеновские трубки с биметаллическим анодом, которые позволяют увеличить количество спектральных линий и исследовать более отдаленные области рассеяния в обратном пространстве в рамках одного измерения. Наиболее перспективной можно считать пару металлов Cr-Cu, для которой отношение длин волн составляет $\lambda(\text{CrK}\alpha)/\lambda(\text{CuK}\alpha) = 1,48$.

Рассчитанные по данным диффузного рассеяния значения среднеквадратических шероховатостей применялись при решении обратной задачи рентгеновской рефлектометрии, что позволяет уточнить распределение плотностей в скрытых слоях и разрешить неоднозначность плотность – шероховатость. Кроме того, установлено, что шероховатость межслойных границ описывается моделью некоррелированных интерфейсов (вертикальная кросс-корреляция шероховатостей от слоя к слою отсутствовала). Латериальная корреляционная длина составляет $\xi = 140$ нм, параметр Херста $h = 0,3$, что указывает на развитый рельеф межслойных границ раздела. По двум полученным профилям рассеяния, обработанным совместно, восстановлена двумерная картина диффузного рассеяния рентгеновского излучения в обратном пространстве (см. рис.4).

В таблице представлены итоговые результаты анализа параметров диффузионно-барьерных структур TiN/Ti. При обобщении данных о составе, плотности, особенностях процессов нанесения пленок идентифицированы подслои в пленке нитрида титана. Для образца диффузионно-барьерной структуры установлено, что пленка нитрида титана представлена тремя отдельными слоями. Это объясняется особенностями много-

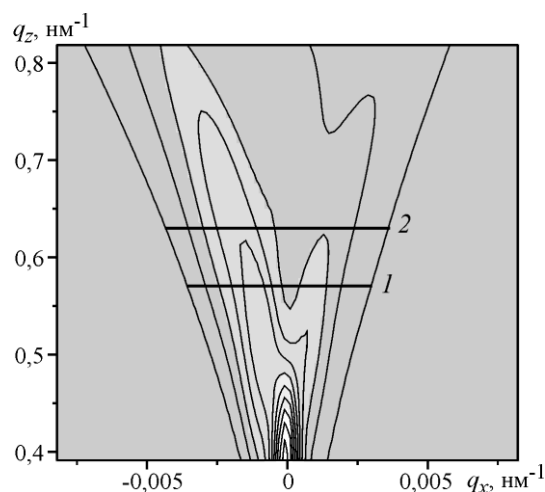


Рис.4. Картина диффузного рассеяния рентгеновского излучения в обратном пространстве. Отрезки 1 и 2 – измеренные профили диффузного рассеяния для длин волн $\lambda_1 = 0,154$ нм и $\lambda_2 = 0,139$ нм соответственно

ступенчатого технологического процесса. Тонкий рыхлый слой между титаном и нитридом титана с плотностью $2,48 \text{ г/см}^3$ представляет собой пленку, которая не была полностью уплотнена и кристаллизована обработкой в плотной плазменной среде. Далее следует уплотненный подслой нитрида титана ($4,85 \text{ г/см}^3$), затем на поверхности – окисленный в атмосфере воздуха вследствие отсутствия верхнего защитного покрытия и наличия остаточного заряда после обработки в плазме подслоя нитрида титана с плотностью $3,06 \text{ г/см}^3$.

**Обобщенные результаты измерений параметров
диффузионно-барьерных слоев TiN/Ti**

Слой	Толщина слоя, нм	Шероховатость, нм	Плотность, г/см^3
TiN (окисленный)	1,5	0,7	3,06
TiN (уплотненный)	2,7	0,6	4,85
TiN (неуплотненный)	1,8	0,6	2,48
Ti	10,8	0,4	4,50
SiO ₂	15,3	0,3	2,20
Si	∞	0,4	2,33

Заключение. Исследования особенностей диффузионно-барьерных слоев TiN/Ti с помощью комплекса методов рентгеновской относительной рефлектометрии и диффузного рассеяния рентгеновского излучения показали следующее. За счет привлечения данных диффузного рассеяния и их совместной обработки с данными рефлектометрии разрешена неоднозначность типа плотность/шероховатость при решении обратной задачи рефлектометрии, что позволяет рассчитать параметры неучтенных скрытых слоев в исследованной структуре. Двухволновая рентгенооптическая схема измерений имеет преимущества не только для ранее разработанного метода относительной рефлектометрии, но и для метода диффузного рассеяния рентгеновского излучения. Так, разница в длинах волн позволяет исследовать различные области рассеяния рентгеновского излучения за одно измерение.

Работа выполнена при финансовой поддержке Российского научного фонда (проект № 15-19-10054).

Литература

1. Рентгеновские методы исследования наноструктур и нанообъектов электроники / *Н.Н. Герасименко, Б.Н. Рыгалин, Д.И. Смирнов и др.* // Нанотехнологии в электронике. Вып. 2 / Под ред. Ю.А. Чаплыгина. – М.: Техносфера, 2013. – 688 с.
2. Многофункциональный рентгеновский рефлектометр для исследования наноструктур / *А.Г. Турьянский, Н.Н. Герасименко, И.В. Пиршин и др.* // Наноиндустрия. – 2009. – № 5(17). – С. 40–43.
3. X-ray and neutron scattering from rough surfaces / *S.K. Sinha, E.B. Sirota, S. Garoff et al.* // Phys. Rev. B. – 1988. – Vol. 38. – No. 4. – P. 2297–2311.
4. *Holy V., Pietsch U., Baumbach T.* High-resolution X-ray scattering from thin films and multilayers // Springer Tracts in Modern Physics. – 2004. – Vol. 149. – 408 p.
5. *Holy V., Baumbach T.* Nonspecular x-ray reflection from rough multilayers // Phys. Rev. B. – 1994. – Vol. 49. – Iss. 15. – P. 10668–10676.
6. Analysis of 2D GISAXS patterns obtained on semiconductor nanocrystals / *M. Buljan, K. Salamon, P. Dubcek et al.* // Vacuum. – 2003. – Vol. 71. – P. 65–70.
7. Ordering mechanism of stacked CdSe/ZnS_xSe_{1-x} quantum dots: A combined reciprocal-space and real-space approach / *Th. Schmidt, E. Roventa, T. Clausen et al.* // Phys. Rev. B. – 2005. – Vol. 72. – P. 195334.
8. Проблемы измерения параметров элементов и структур современной микро- и нанoeлектроники на примере диффузионно-барьерных структур TiN/Ti / *Д.И. Смирнов, Р.М. Гиниятуллин, И.Ю. Зюльков и др.* // Письма в ЖТФ. – 2013. – Т. 39. – № 14. – С. 34–42.

9. **Parratt L.G.** Surface studies of solids by total reflection of X-rays // Phys. Rev. – 1954. – Vol. 95. – P. 359–369.

10. **Ulyanekov A., Sobolewski S.** Extended genetic algorithm: application to X-ray analysis // J. Phys. D: Appl. Phys. – 2005. – Vol. 38. – P. A235–A238.

Статья поступила
27 октября 2015 г.

Смирнов Дмитрий Игоревич – инженер лаборатории радиационных методов технологии и анализа МИЭТ, научный сотрудник лаборатории рентгенооптических методов диагностики наноструктур ФИАН. *Область научных интересов:* рентгеновские методы анализа многослойных наноструктур, радиационные процессы в твердотельных структурах. **E-mail:** rmta@miee.ru

Герасименко Николай Николаевич – доктор физико-математических наук, профессор, начальник лаборатории радиационных методов технологии и анализа МИЭТ, ведущий научный сотрудник лаборатории рентгенооптических методов диагностики наноструктур ФИАН, профессор Национального исследовательского Томского государственного университета. *Область научных интересов:* ионная имплантация в полупроводники, процессы формирования структур (самоорганизация) в твердых телах при облучении.

Овчинников Владимир Владимирович – доктор физико-математических наук, профессор, заведующий лабораторией пучковых воздействий Института электрофизики Уральского отделения РАН (г. Екатеринбург). *Область научных интересов:* математическое моделирование радиационных процессов в твердом теле, физические основы радиационных методов технологии.

Информация для читателей журнала

«Известия высших учебных заведений. Электроника»

Вы можете оформить подписку на 2016 г. в редакции с любого номера. Стоимость одного номера – 1000 руб. (с учетом всех налогов и почтовых расходов).

Адрес редакции: 124498, г. Москва, г. Зеленоград, пл. Шокина, д. 1, МИЭТ, комн. 7231.

Тел.: 8-499-734-62-05. E-mail: magazine@miee.ru

<http://www.miet.ru/structure/s/894>