

Mo/Si 多层膜表面粗糙度相关镀膜工艺的研究

孙诗壮^{1,2}, 金春水^{1*}, 喻波^{1**}, 郭涛¹, 姚舜¹, 李春¹, 邓文渊¹

¹中国科学院长春光学精密机械与物理研究所, 吉林 长春 130033;

²中国科学院大学, 北京 100049

摘要 Mo/Si 多层膜镀膜工艺是极紫外光刻的关键技术之一, 为了优化并提升 Mo/Si 多层膜的镀膜工艺, 研究了气压、靶-基底间距这两个工艺参数对 Mo/Si 多层膜表面粗糙度的影响。根据磁控溅射物理过程, 建立了一个原子沉积的物理模型, 分析了原子沉积到基底时的入射角度和入射能量分布对气压、靶-基底间距的影响。此外, 利用直流磁控溅射镀膜机, 制备了 Mo/Si 多层膜样片, 并测量了膜表面粗糙度和功率谱密度, 研究了膜表面粗糙度和功率谱密度随气压和靶-基底间距的演化规律。理论和实验的结论一致, 所提模型从理论上解释了实验测量结果。

关键词 薄膜; Mo/Si 多层膜; 极紫外光刻; 磁控溅射; 表面粗糙度; 功率谱密度

中图分类号 O484.5

文献标志码 A

doi: 10.3788/AOS202040.1031002

Research on Surface Roughness Related Coating Processes of Mo/Si Multilayers

Sun Shizhuang^{1,2}, Jin Chunshui^{1*}, Yu Bo^{1**}, Guo Tao¹, Yao Shun¹, Li Chun¹,
Deng Wenyuan¹

¹Changchun Institute of Optics, Fine Mechanics and Physics, Chinese Academy of Sciences,
Changchun, Jilin 130033, China;

²University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China

Abstract Mo/Si multilayer coating process is one of the key technologies for extreme ultraviolet lithography. In order to optimize the coating process of Mo/Si multilayers, we study the influences of environment pressure and target-substrate distance on the surface roughness of Mo/Si multilayer coating. A model of atomic deposition is established based on the physical process of magnetron sputtering. The variations of incident angle and the energy distribution of depositing atoms with environment pressure and target-substrate distance are investigated. Moreover, the experiments are performed to fabricate Mo/Si multilayer coating samples using a direct current magnetron sputtering coating machine, and the evolutions of the surface roughness and power spectral density with environment pressure and target-substrate distance are studied. The conclusion obtained from the model agrees well with that from the experiments, and the proposed model can provide a theoretical explanation for the results measured by the experiments.

Key words thin films; Mo/Si multilayer coating; extreme ultraviolet lithography; magnetron sputtering; surface roughness; power spectral density

OCIS codes 310.1860; 310.6870; 340.7480

1 引 言

随着集成电路向小型化和高性能的方向发展, 光刻技术作为最流行的集成电路制作工艺之一, 得到了越来越多的研究。极紫外光刻作为最具潜力的光刻技术, 正在向产业化方向发展。极紫外光刻技

术以 Sn 等离子体激发出的 13.5 nm 极紫外光为工作光源, 由于大多数材料对极紫外光都具有很强的吸收性, 因此无法使用透射式光学系统实现极紫外光刻系统的设计。极紫外光刻系统采用反射式光学系统, 在反射镜表面沉积 Mo/Si 多层膜可提升极紫外光的工作效率^[1-5]。

收稿日期: 2019-11-25; 修回日期: 2020-02-16; 录用日期: 2020-02-26

基金项目: 国家自然科学基金(61605201, 21603211)

* E-mail: jincs@sklao.ac.cn; ** E-mail: yubodisan@126.com

将 Mo、Si 材料叠加在一起,形成的 Mo/Si 多层膜结构可提升反射率,其中 Mo、Si 材料对极紫外光分别具有高、低反射率^[2]。依据布拉格衍射原理,极紫外光在多层膜多个界面上的反射光强能够叠加,从而引起整体反射率的提升。德国的 IOF 实验室^[6]和中国科学院长春光学精密机械与物理研究所^[7-8]制作的 Mo/Si 多层膜对 13.5 nm 极紫外光的反射率可以达到 69% 以上。多层膜对极紫外光的反射率主要受膜的周期厚度、Mo/Si 膜层厚度比以及膜表面、界面粗糙度等因素的影响^[9-10]。

为进一步优化 Mo/Si 多层膜镀膜工艺,本文研究了环境气压和靶-基底间距这两种镀膜工艺参数对膜表面粗糙度的影响。使用磁控溅射镀膜机制作 Mo/Si 多层膜,利用原子力显微镜(AFM)测量膜表面轮廓及粗糙度,并且通过傅里叶变换方法计算了膜表面功率谱密度(PSD)^[11-12]。

除此之外,本文建立了一个基于磁控溅射法的中原子沉积物理模型,模拟计算了 Mo、Si 原子沉积到基底时的入射角度和能量分布,分析了入射角度和能量分布随气压、靶-基底间距的变化规律,并利用模拟结果分析了实验中环境气压及靶-基底间距对多层膜表面粗糙度和功率谱密度的影响。

2 理论建模

2.1 磁控溅射物理模型

本文使用直流磁控溅射镀膜机沉积 Mo/Si 多层膜。直流磁控溅射沉积镀膜过程如下。1) 电离工作气体:工作气体被真空室内的游离电子电离^[13],在电场和磁场的作用下,电离的工作气体加速,从不同方向轰击到靶上。2) 气体与靶相互作用:工作气体与靶发生碰撞,靶溅射出沉积原子^[14]。3) 原子在空气中飞行:沉积原子在沉积过程中与空气中的粒子发生碰撞,沉积原子动量发生改变^[15]。4) 成膜生长过程:沉积原子与基底碰撞,通过热扩散生长成膜^[16]。

环境气压和靶-基底间距只会直接影响沉积原子到达基底之前的运动过程,不会直接影响沉积原子的成膜生长过程,因此本文依据 1)、2)、3) 步骤来建立仿真模型,计算得到沉积原子的入射角度和能量分布,分析环境气压和靶-基底间距这两种工艺参数对沉积原子运动的影响。本文利用二元碰撞的方法,计算工作气体与靶之间的相互作用,用蒙特卡罗方法计算电离气体在磁场电场中的加速过程以及沉积原子在空气中的飞行过程。

2.2 二元碰撞方法

二元碰撞^[17]的过程如图 1 所示。粒子 1 与粒子 2 发生碰撞,粒子 1 将部分动量传递给粒子 2,粒子 1 改变的运动角度为 θ ,粒子 2 改变的运动角度为 φ 。根据能量守恒定律和动量守恒定律,即可计算出粒子 1 和粒子 2 的运动偏转角度 θ 和 φ 及粒子 1 传递给粒子 2 的动能 ΔE ,计算公式为

$$\frac{1}{2}m_1v_1^2 = \frac{1}{2}m_1v_1'^2 + \frac{1}{2}m_2v_2^2, \quad (1)$$

$$m_1v_1 = m_1v_1' + m_2v_2, \quad (2)$$

$$\Delta E = E \frac{4m_1m_2}{(m_1 + m_2)^2} \sin^2\left(\frac{\theta}{2}\right), \quad (3)$$

式中: E 为入射原子的初始动能; m_1 、 m_2 为原子 1、2 的原子质量; v_1 、 v_2 、 v_1' 分别为碰撞前原子 1、碰撞后原子 2 和碰撞后原子 1 的速度。由此可以建立模型并计算工作气体粒子与靶之间的相互作用过程。

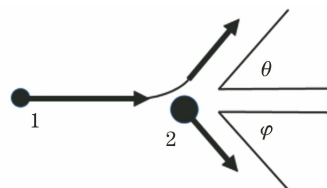


图 1 二元碰撞示意图

Fig. 1 Schematic of binary collision

2.3 蒙特卡罗方法

蒙特卡罗方法^[15]仿真粒子沉积的核心思想是:通过生成的随机数,决定粒子下一时刻的运行轨迹。具体过程如图 2 所示:1) 将空间划分为设定大小的网格,设置粒子初始动量的分布。2) 计算一个时间步长内网格中粒子的运动轨迹。3) 在同一个时间步长内,依据二元碰撞方法计算网格内粒子之间的相互作用。4) 通过 2)、3) 步骤最终得到网格中粒子的新的位置和动量。5) 重复 2)、3)、4) 步骤,计算下一时间步长后粒子的位置和动量。如此循环往复,可以模拟一定时间范围内粒子的运动过程和轨迹。

2.4 仿真结果

原子沉积的结构如图 3 所示,依据磁控溅射机的结构设定模型参数:靶的口径为 10 cm;Mo 靶、Si 靶上施加的电压分别为 350 V、600 V;工作气体为 Ar 气;环境温度为 300 K。

固定以上环境参数,研究气压以及靶-基底间距对沉积原子的入射角余弦值及能量分布的影响。研究气压时的条件为:固定靶-基底间距为 12 cm,设置不同的压强为 0.06, 0.08, 0.12 Pa。研究靶-基底间距时的条件为:固定环境气压为 0.06 Pa,设置不

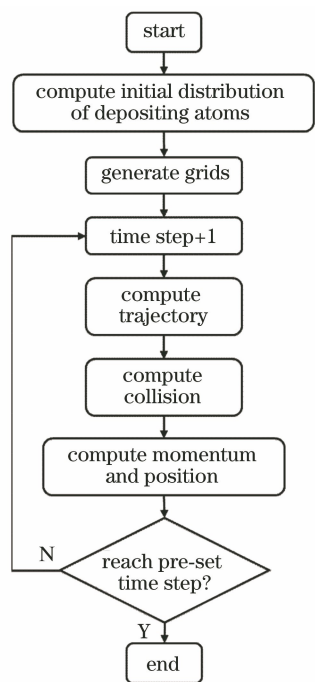


图 2 计算沉积粒子运动的流程图

Fig. 2 Flow chart of movement calculation of depositing particles

同的靶-基底间距为 10,12,14 cm。

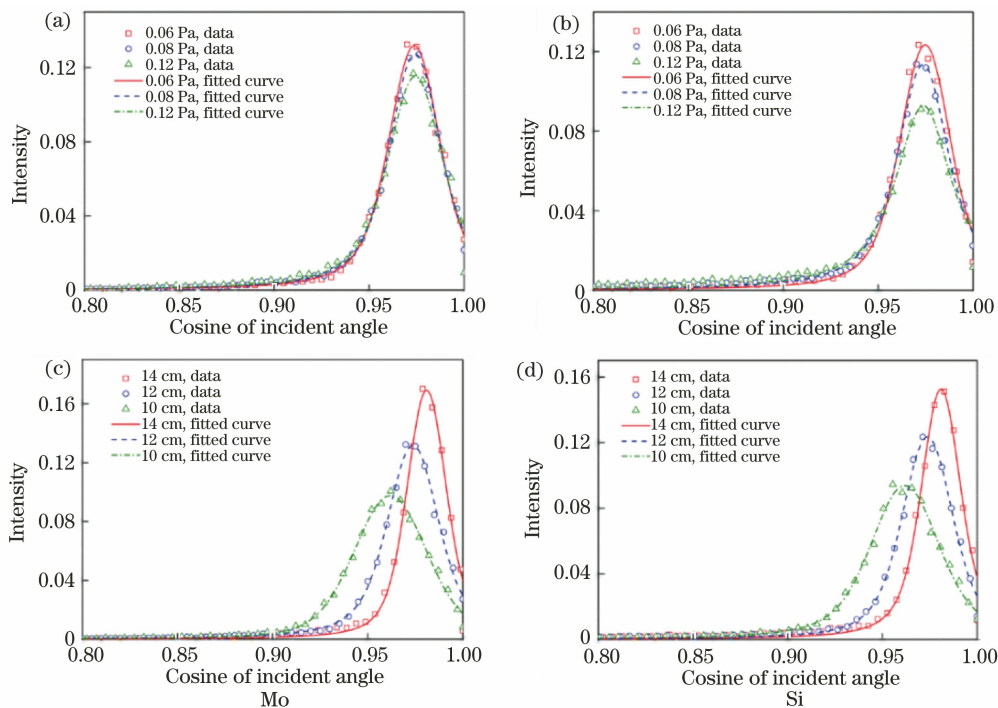


图 4 Mo, Si 原子入射角余弦的分布。(a)(b)随气压的变化;(c)(d)随靶-基底间距的变化

Fig. 4 Cosine of incident angle distributions of Mo and Si atoms. (a)(b) Varying with gas pressure; (c)(d) varying with target-substrate distance

图 5 为沉积的 Mo、Si 原子入射能量随气压和靶-基底间距的变化关系。从图 5(a)、(b)可知,随着气压的增加,入射角能量分布的峰值中心位置向

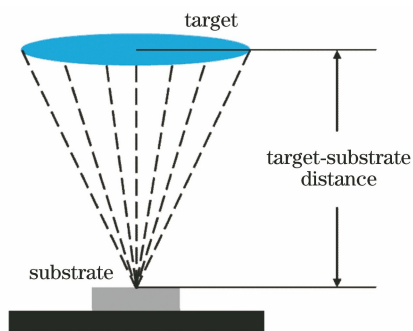


图 3 磁控溅射中原子沉积的示意图

Fig. 3 Schematic of magnetron sputtering atomic deposition

图 4 为沉积的 Mo、Si 原子入射角度的余弦值随气压和靶-基底间距的变化关系。从图 4 (a)、(b)可知,随着气压的增加,入射角度余弦值分布的峰值中心位置几乎不变,即大部分 Mo、Si 原子的入射角度分布几乎不变。由此可知:环境气压几乎不影响沉积的 Mo、Si 原子的入射角度分布。从图 4(c)、(d)可知,随着靶-基底间距的增加,入射角度余弦值分布的峰值中心位置向右移动,即大部分 Mo、Si 原子的入射角度随着靶-基底间距的增加而减小,原子越来越接近垂直入射。

左移动。由此可知,随着环境气压的增加,沉积的 Mo、Si 原子的入射能量降低。从图 5(c)、(d)可知,随着靶-基底间距的增加,入射能量分布的峰值中心

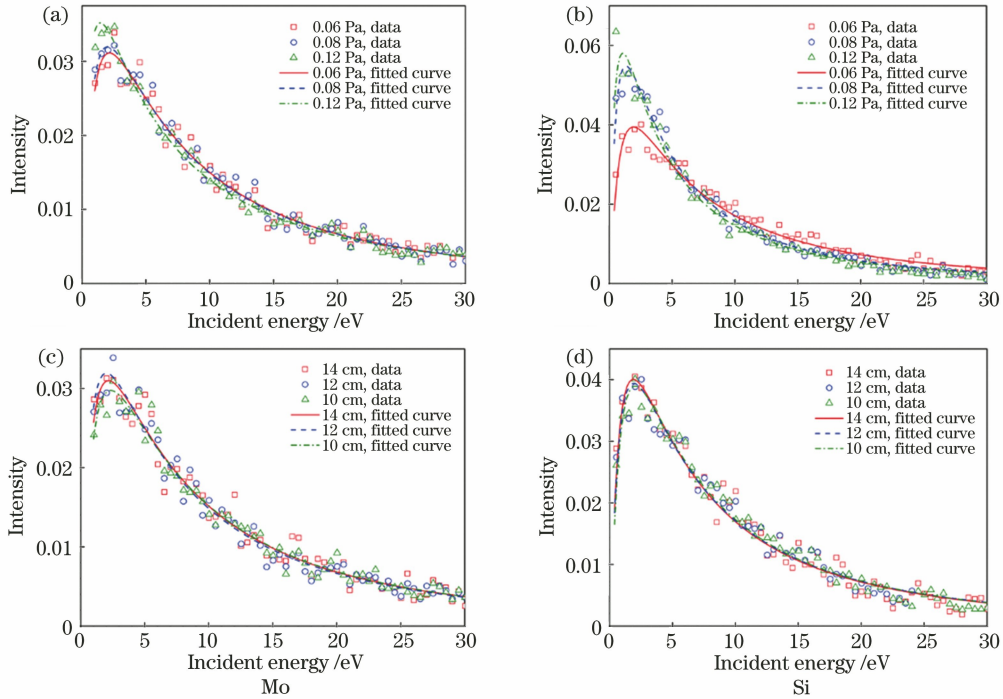


图 5 Mo,Si 原子入射能量的分布。(a)(b)随气压的变化;(c)(d)随靶-基底间距的变化

Fig. 5 Incident energy distributions of Mo and Si atoms. (a)(b) Varying with gas pressure; (c)(d) varying with target-substrate distance

位置几乎不变,即靶-基底间距在一定范围内的变化几乎不影响 Mo、Si 原子的入射能量分布。

根据图 4、5 模拟计算结果可知:1)随着气压的变化,Mo、Si 原子沉积到基底时的入射角度分布几乎不变;大部分粒子入射能量随着气压的增大而减小。2)大部分 Mo、Si 原子沉积到基底时的入射角度随着靶-基底间距的增加而减小;入射能量分布几乎不随靶-基底间距的变化而变化。

3 实验结果

3.1 实验条件

实验使用直流磁控溅射镀膜机沉积 Mo/Si 多层膜。真空系统使用涡轮分子泵,工作气体为 Ar 气,本底气压为 0.016 Pa。Mo、Si 靶所加的电压分别为 350 V、600 V。基底使用超光滑硅基底,尺寸为 15 mm×15 mm。Mo/Si 多层膜的周期为 40.5 个周期(最底层为 Si,加一层 Mo,组成一个周期,多次叠加组成 40 个周期;最上层再另加一层 Si,为 0.5 个周期,最终是 40.5 个周期),每个周期厚度为 6.95 nm。本文使用原子力显微镜测量多层膜表面的粗糙度。

3.2 功率谱密度

膜表面的均方根粗糙度计算公式为

$$R_q = \sqrt{\frac{1}{s_r} \iint_0^{l_x} \int_0^{l_y} z^2 dx dy}, \quad (4)$$

式中: s_r 为测量区间的面积; dx 、 dy 分别为 x 、 y 方向长度的积分; l_x 、 l_y 为 x 、 y 方向的长度; z 为测量区间内的表面高度分布。粗糙度的离散形式为

$$R_q = \sqrt{\frac{1}{m \times n} \sum_{i=1}^m \sum_{j=1}^n z_{ij}^2}, \quad (5)$$

式中: m 、 n 分别为采样区间内 x 、 y 方向上的采样个数; z_{ij} 为采样区间内的表面高度分布; i 、 j 分别对应采样区间内 x 、 y 方向上采样点编号。根据(5)式可以计算表面粗糙度,但是此方法仍然有一些缺点,如图 6(a)、(b)所示,两种具有不同形貌的表面轮廓有着相同的粗糙度数值。为了更加准确地表征表面形貌,引入功率谱密度^[11-12]这一评价方法。

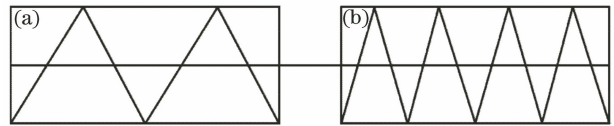


图 6 具有相同粗糙度的不同表面轮廓。(a)低空间频率;(b)高空间频率

Fig. 6 Different surface contours with same roughness value. (a) Low-spatial-frequency; (b) high-spatial-frequency

功率谱密度的计算原理为:利用傅里叶变换,将表面高度在空间位置上的分布转换为在空间频率上的分布。连续形式的功率谱密度的计算方式为

$$F[u(t)] = U(v) = \int_{-\infty}^{\infty} u(t) \exp(-2i\pi vt) dt, \quad (6)$$

式中: v 为空间频率; $u(t)$ 为高度的连续函数; $F[\cdot]$ 为傅里叶变化; $U(v)$ 为高度在空间频率上的连续函数; t 为空间位置。

离散形式的功率谱密度的计算方式为

$$\text{PSD}(f_m) = \frac{\Delta x}{N} \left| \sum_{n=0}^{N-1} z(m) \exp(-2i\pi nm/N) \right|^2, \quad (7)$$

式中: f_m 为空间频率离散化形式; Δx 为空间上离散点的间隔距离; $z(m)$ 为离散点的高度分布; $m = 0, 1, 2, \dots, N-1$, 其中, N 为离散点的个数。根据(7)式可以计算膜表面轮廓的功率谱密度,评价样品的表面粗糙程度。

3.3 结果分析

3.3.1 环境气压的影响

在靶-基底间距为 12 cm,环境气压为 0.06, 0.08, 0.12 Pa 的条件下,使用磁控溅射镀膜机制备

Mo/Si 多层膜。使用 AFM 测量得到的膜表面高度分布 z 如图 7 所示。

根据膜表面轮廓计算得到的表面粗糙度与环境气压的关系如图 8(a)所示。可以看出:随着气压的增加,膜表面的粗糙度增加;在 0.06~0.12 Pa 区间内,膜表面的粗糙度与气压几乎呈正比关系。图 8(b)为膜表面的功率谱密度与环境气压的关系。可以看出:随着环境气压的增加,膜表面的 PSD 在高空间频率和低空间频率上都随着气压的增加而增加。依据图 4(a)、(b)和图 5(a)、(b)的仿真结果可知,气压增加几乎不改变入射粒子的角度分布,只降低大部分粒子的入射能量;随着大部分粒子入射能量的降低,沉积原子传递给膜表面原子的动能减少,从而膜表面原子跳跃到其他位置的概率降低,因此膜更容易形成岛状结构,最终导致膜表面高、低空间频率上的粗糙度增加。

3.3.2 靶-基底间距的影响

在气压为 0.06 Pa,靶-基底间距为 14, 12, 10 cm 的实验条件下,使用磁控溅射镀膜机沉积 Mo/Si 多层膜。使用 AFM 测量得到的膜表面高度分布 z 如图 9 所示。

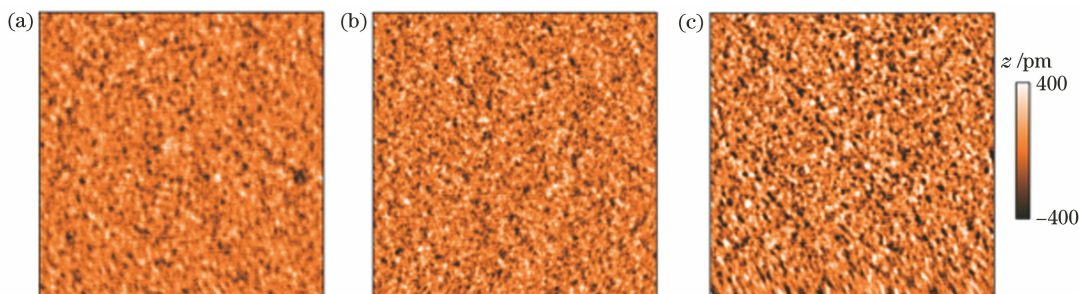


图 7 不同气压下测量得到的 Mo/Si 多层膜的表面轮廓结构。(a) 0.06 Pa; (b) 0.08 Pa; (c) 0.12 Pa

Fig. 7 Surface contour structures of Mo/Si multilayer coatings measured at different pressures.

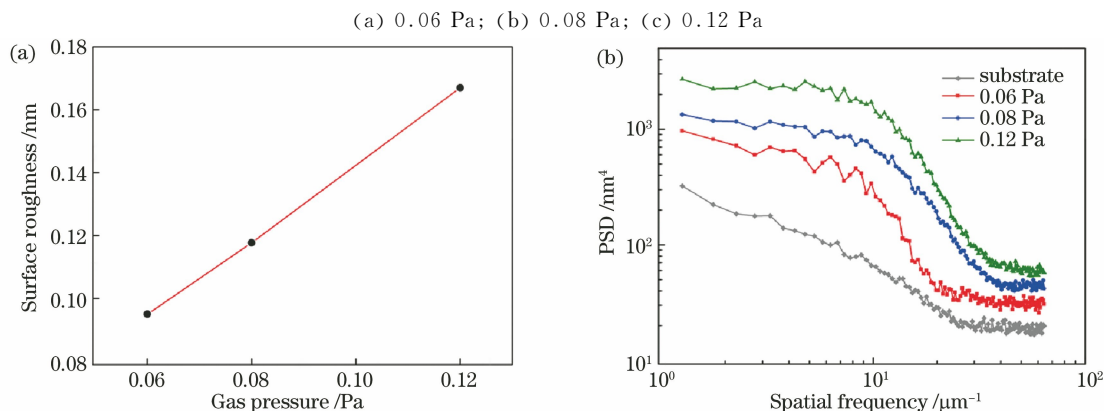


图 8 不同气压下测量得到的 Mo/Si 多层膜的表面粗糙度。(a)粗糙度;(b)功率谱密度

Fig. 8 Surface roughness of Mo/Si multilayer coatings measured at different gas pressures.

(a) Roughness; (b) power spectral density

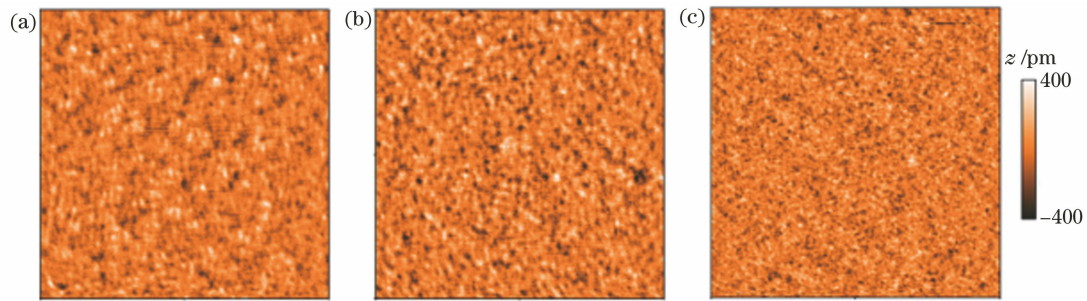


图 9 不同靶-基底间距下测量得到的 Mo/Si 多层膜的表面轮廓结构。(a) 14 cm; (b) 12 cm; (c) 10 cm
Fig. 9 Surface contour structures of Mo/Si multilayer coatings measured at different target-substrate distances.

(a) 14 cm; (b) 12 cm; (c) 10 cm

表面粗糙度与环境气压的关系如图 10(a) 所示。可以看到:随着靶-基底间距的增加,膜表面的粗糙度几乎不变。图 10(b)为膜表面的功率谱密度与靶-基底间距的关系,可以看出,随着靶-基底间距的增加,低空间频率的 PSD 几乎没有改变,而高空间频率的 PSD 降低。依据图 4(c)、(d)和图 5(c)、(d)的仿真结果可知,靶-基底间距的增加几乎不影

响入射粒子的入射能量分布,只减小大部分粒子的入射角度;随着大部分粒子入射角度的减小,膜结构难以遮挡粒子沉积,从而使沉积的粒子填补膜层表面的空位。因此,高空间频率粗糙度随着入射角度的减小而减小。然而,低空间频率粗糙度是由大颗粒状结构引起的,在沉积粒子入射能量不变的情况下,低空间频率粗糙度几乎不会改变。

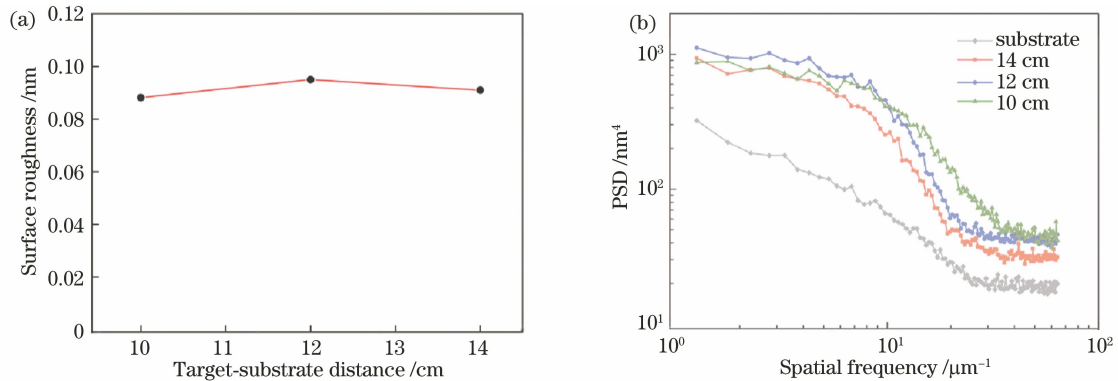


图 10 不同靶-基底间距下测量得到的 Mo/Si 多层膜的表面粗糙度。(a)粗糙度;(b)功率谱密度
Fig. 10 Surface roughness of Mo/Si multilayer coatings measured at different target-substrate distances.

(a) Roughness; (b) power spectral density

4 结 论

构建了一种模拟磁控溅射中粒子沉积的物理模型,并使用该模型计算了不同环境气压和靶-基底间距下沉积的 Mo、Si 原子的入射角度和能量分布。利用直流磁控溅射镀膜机制备了 Mo/Si 多层膜,测量了膜表面的粗糙度和 PSD,并研究了环境气压和靶-基底间距对膜表面粗糙度和 PSD 的影响。理论仿真中入射角度和能量分布的演化规律与实验中膜表面粗糙度的演化规律一致,并且理论仿真能够解释实验测量结果。主要结论有:1)随着气压的增加,大部分粒子的入射能量降低,入射角度几乎不变;膜表面粗糙度增加,高、低空间频率的 PSD 增加。2)随着靶-基底间距的增加,大部分粒子入射角度减

小,入射能量几乎不变;膜表面粗糙度几乎不变,高空间频率的 PSD 降低,低空间频率的 PSD 几乎不变。

参 考 文 献

- [1] Attwood D, Sakdinawat A. X-rays and extreme ultraviolet radiation: principles and applications [M]. Cambridge: Cambridge University Press, 2016.
- [2] Louis E, Yakshin A E, Tsarfati T, et al. Nanometer interface and materials control for multilayer EUV-optical applications[J]. Progress in Surface Science, 2011, 86(11/12): 255-294.
- [3] Wagner C, Harned N. EUV lithography: lithography gets extreme [J]. Nature Photonics, 2010, 4(1): 24-26.

- [4] Björn A, Igor V, Norbert R, et al. LPP EUV source development for HVM [J]. SPIE, 2006, 6151: 61510R .
- [5] Kinoshita H. Soft X-ray reduction lithography using multilayer mirrors[J]. Journal of Vacuum Science & Technology B: Microelectronics and Nanometer Structures, 1989, 7(6): 1648.
- [6] Feigl T, Perske M, Pauer H, et al. Sub-aperture EUV collector with dual-wavelength spectral purity filter[J]. SPIE, 2015, 9422: 94220E.
- [7] Yu B, Jin C S, Yao S, et al. Control of lateral thickness gradients of Mo-Si multilayer on curved substrates using genetic algorithm [J]. Optics Letters, 2015, 40(17): 3958-3961.
- [8] Yu B, Wang L P, Li H L, et al. Low-stress and high-reflectance Mo/Si multilayers for EUVL by magnetron sputtering deposition with bias assistance [J]. SPIE, 2018, 10583: 105831T.
- [9] Suh A Y, Polycarpou A A. Digital filtering methodology used to reduce scale of measurement effects in roughness parameters for magnetic storage supersmooth hard disks[J]. Wear, 2006, 260(4/5): 538-548.
- [10] Berning P H. Theory and calculation of optical thin films[J]. Physics of Thin Films, 1963, 1: 69-121.
- [11] Stearns D G. The scattering of X rays from nonideal multilayer structures[J]. Journal of Applied Physics, 1989, 65(2): 491-506.
- [12] Stearns D G, Gaines D P, Sweeney D W, et al. Nonspecular X-ray scattering in a multilayer-coated imaging system [J]. Journal of Applied Physics, 1998, 84(2): 1003-1028.
- [13] Birdsall C K, Langdon A B. Plasma physics via computer simulation[M]. London: Taylor & Francis Group, 2004.
- [14] Ziegler J F. Srim-2003[J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms, 2004, 219/220: 1027-1036.
- [15] van Aeken K, Mahieu S, Depla D. The metal flux from a rotating cylindrical magnetron: a Monte Carlo simulation [J]. Journal of Physics D: Applied Physics, 2008, 41(20): 205307.
- [16] Yang Y G, Johnson R A, Wadley H N G. A Monte Carlo simulation of the physical vapor deposition of nickel[J]. Acta Materialia, 1997, 45(4): 1455-1468.
- [17] Eckstein W. Computer simulation of ion-solid interactions[M]. Heidelberg: Springer, 1991.