

PACS: 66.30.-h, 75.47.Ln, 81.65.Mq, 68.55.Ln, 75.47.Gk

Ю.М. Николаенко, В.В. Бурховецкий, А.С. Корнеевец,  
Н.Б. Эфрос, И.Ю. Решидова

## О ТОЧНОСТИ ОЦЕНКИ ТОЛЩИНЫ ЭПИТАКСИАЛЬНЫХ ПЛЕНОК $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_{3-\delta}$ ПО SEM-ИЗОБРАЖЕНИЮ ПОПЕРЕЧНОГО СКОЛА ПЛЕНОЧНЫХ СТРУКТУР

Донецкий физико-технический институт им. А.А. Галкина

Статья поступила в редакцию 12 ноября 2018 года

*С использованием серии тонких эпитаксиальных пленок  $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_{3-\delta}$  (LSMO), изготовленных магнетронным методом, изучены особенности и недостатки метода контроля толщины пленок по изображению поперечного скола пленочных структур, полученного с помощью электронного микроскопа JSM-6490 LV. Установлено, что достаточно высокое пространственное разрешение изображений не позволяет реализовать приемлемую точность контроля толщины по причине отсутствия резкого контраста между изображениями участков пленки и подложки. Показано, что для контроля наноразмерных толщин пленок более перспективным является разрабатываемый нами косвенный метод, основанный на анализе данных по относительному содержанию катионного состава материала пленки в пленочной структуре.*

**Ключевые слова:** эпитаксиальные пленки, легированные манганиты, сканирующий электронный микроскоп, гравиметрический метод, энергодисперсионный спектрометр, наноразмерная толщина

Известно, что толщина пленок является одним из ключевых параметров для количественных характеристик физических явлений в пленочных структурах, включая характеристики электронного и диффузионного транспорта, оптических, тепловых и магнитных эффектов. К прямым методам мы относим метод контроля толщины по SEM-изображению поперечного скола пленочных структур [1], причем, исходя из пространственного разрешения электронного микроскопа JSM-6490 LV фирмы JEOL ( $< 10$  nm), точность измерений должна быть достаточно высокой. Однако на практике успешно реализовать эту возможность не всегда удается. В настоящей работе мы описываем особенности и недостатки данного метода.

Как было описано нами ранее в работе [1], на SEM-изображениях поперечного скола пленочной структуры (рис. 1,а, [1]) и поверхности пленочной структуры с механическим повреждением пленки (рис. 1,б) положение интерфейса визуально можно определить по контрасту участков изображения светлое/темное. В то же время ясно, что SEM-изображение, полученное в

режиме вторичных электронов, не обеспечивает контраста, связанного с атомным составом или структурой материалов пленки и подложки, а в основном характеризует пространственный рельеф изучаемой поверхности. Можно предположить, что при существенном различии механических свойств материалов пленки и подложки рельеф будет иметь особенность на интерфейсе пленка–подложка, по положению которого можно определить толщину пленки, поскольку положение внешней поверхности пленочной структуры контролируется хорошо.

Для проверки реализуемости такой возможности методом магнетронного распыления мишени мы изготовили серию LSMO-пленок на монокристаллических подложках  $\text{NdGaO}_3$  с разным временем экспозиции. Режим нанесения пленок соответствовал эпитаксиальному росту пленочных слоев [2,3], т.е. температуру подложки поддерживали на уровне  $600^\circ\text{C}$ , а мощность питания магнетрона была равна 30 W. Размер подложек примерно равен  $11 \times 5 \times 1$  mm. Пленку наносили через маску с таким расчетом, чтобы материал пленки не попадал на боковые поверхности подложки, что необходимо для предотвращения дополнительной ошибки при оценке толщины пленки гравиметрическим методом. Кроме этого, предварительно в подложках с тыльной стороны были сделаны тонкие пропилены (примерно на половину ее толщины) с целью обеспечить максимально ровный скол пленочной структуры. Механический разлом пленочных структур осуществляли при температуре жидкого азота.

На рис. 1 приведен результат измерений толщины пленок двумя методами – гравиметрическим и по изображению поперечного скола пленочной структуры. Для получения четкого SEM-изображения торец пленочной структуры покрывали тонким слоем графита, который предотвращал скопление заряда на участке диэлектрической подложки при облучении ее электронным пучком.

Гравиметрические измерения проводили с помощью весов с цифровым дисплеем «Ohaus Analytical plus» (Швейцария), позволяющих контролировать пять знаков ( $10^{-5}$  g). Как видим, точность измерений толщины гравиметрическим методом невелика – при указанном выше размере пленок она составляет примерно  $\pm 40$  nm. Тем не менее отклонение данных измерения толщины прямым методом (казалось бы, значительно более точным) существенно превышает погрешность при времени экспозиции  $t = 120$  min и нахо-

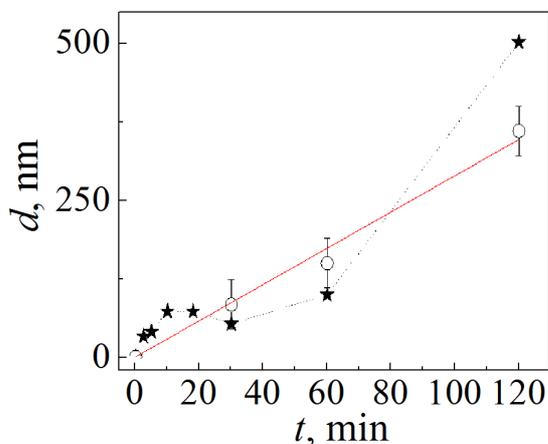


Рис. 1. Результат измерений толщины пленок гравиметрическим методом (○) и по изображению поперечного скола пленочной структуры (★)

дится на пределе отклонения при  $t = 60$  и  $30$  min. При относительно малых ( $t < 30$  min) промежутках времени нанесения пленок данные по оценке их толщины изменяются нелинейно и немонотонно, что свидетельствует либо о нестабильной скорости роста толщины при магнетронном распылении мишени, либо об ошибочном определении положения интерфейса на SEM-изображении пленочной структуры.

Следует отметить, что керамическая мишень  $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_{3-\delta}$  механически достаточно прочная и при соблюдении стабильных условий распыления мишени резких и значительных изменений скорости роста пленки ранее нами не наблюдалось. Тем не менее в данном случае необходима дополнительная проверка, которую мы осуществили с помощью косвенных характеристик для контроля толщины пленок.

Изменения относительного состава катионов пленки и подложки для пленочных структур с различным временем экспозиции показаны на рис. 2. Измерения проведены с помощью энергодисперсионного спектрометра INCA Energy 350, входящего в состав электронного микроскопа JSM-6490 LV. В случае пленочных структур, представляющих собой нанотолщинную пленку на относительно толстой подложке, спектрометр дает информацию об элементном составе и пленки, и подложки. В цифровом отчете спектрометра суммарное содержание атомов нормируется на 100%. В результате при измерении атомного состава структур с пленками разной толщины соотношение концентраций атомов пленки и подложки изменяется. Этот факт отмечался нами ранее [1].

Как видно на рис. 2, относительное содержание катионного состава пленки линейно растет с увеличением времени экспозиции (времени роста пленки) при линейном убывании содержания катионов подложки. Это можно считать надежным свидетельством постоянства скорости роста пленки во время их нанесения.

Таким образом, следует заключить, что немонотонность зависимости  $d(t)$  на рис. 1 и разброс данных измерения толщины пленки прямым методом вызваны неточностью определения положения интерфейса пленка–подложка на SEM-изображении торца пленочной структуры. Иными словами, несмотря на достаточно высокое разрешение SEM-изображения точность контроля оказывается низкой.

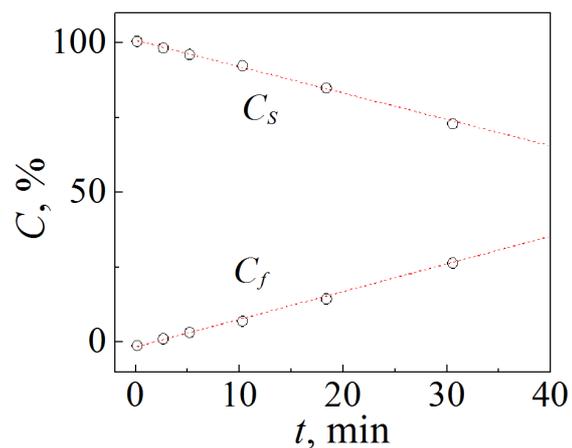


Рис. 2. Изменения суммарного катионного состава элементов пленки  $C_f$  и подложки  $C_s$  в зависимости от времени нанесения пленок магнетронным методом

Возникает вопрос, можно ли повысить точность контроля толщины пленки прямым методом? Поскольку получаемое SEM-изображение содержит информацию в основном о рельефе изучаемой поверхности, следует обратить внимание на механическую, химическую или комбинированную полировку боковой поверхности пленочной структуры, хотя в случае эпитаксиальной пленки гарантировать успех нельзя. В нашем случае эпитаксиальные пленки имеют близкую кристаллическую структуру и, по-видимому, не сильно различающиеся механические характеристики. Поэтому сделать скол пленочной структуры, на котором бы четко проявлялся интерфейс, не удастся. Можно попытаться использовать различие проводимости пленки и подложки. Действительно, на рис. 1,б работы [1] наблюдается сильный контраст пленки и подложки. Если он действительно отражает не только разную ориентацию поверхностей (горизонтальную и вертикальную по отношению к поверхности пленки), но и разную проводимость пленки и подложки, то эту возможность следует использовать, причем проводимость пленки можно дополнительно увеличить за счет повышения кислородного содержания LSMO-пленки [4.5].

Отметим, что контроль различия атомного состава на боковой поверхности пленочной структуры с помощью измерительных возможностей SEM не дает положительного результата. Дело в том, что область с возбужденным состоянием вещества под действием электронного пучка характеризуется микроскопическими размерами (1–5  $\mu\text{m}$  шириной и до 10  $\mu\text{m}$  в глубину от поверхности). Поэтому контроль состава с наноразмерным пространственным разрешением невозможен.

Таким образом, наиболее высокую точность контроля толщины тонких пленок можно ожидать при использовании разрабатываемого нами косвенного метода, характеризующего этот параметр по изменению относительно катионного состава элементов пленки и подложки.

1. Ю.М. Николаенко, В.В. Бурховецкий, А.С. Корнеевец, Н.Б. Эфрос, И.Ю. Решидова, А.А. Тихий, И.В. Жихарев, В.В. Фарапонов, ФТВД **27**, № 4, 116 (2017).
2. Ю.М. Николаенко, А.Б. Мухин, В.А. Чайка, В.В. Бурховецкий, ЖТФ **80**, № 8, 115 (2010).
3. Патент Украины на полезную модель № 49697, Вакуумная установка для магнетронного распыления мишеней, Ю.М. Николаенко, А.Б. Мухин, Опубл. 11.05.2010 г., Бюл. № 9.
4. В.Н. Варюхин, Ю.М. Николаенко, Ю.В. Медведев, А.Б. Мухин, Б.В. Беляев, В.А. Грицких, И.В. Жихарев, С.В. Кара-Мурза, Н.В. Корчинова, А.А. Тихий, Письма в ЖТФ **35**, № 20, 19 (2009) [Technical Physics Letters **35**, 937 (2009)].
5. Yu.M. Nikolaenko, A.N. Artemov, Yu.V. Medvedev, N.B. Efros, I.V. Zhikharev, I.Yu. Reshidova, A.A. Tikhii, S.V. Kara-Murza, J. Phys. D: Appl. Phys. **49**, 375302 (2016).

*Yu.M. Nikolaenko, V.V. Burkhovetskii, A.S. Korneevets, N.B. Efros, I.Yu. Reshidova*

ON ACCURACY OF ESTIMATION OF THE THICKNESS OF THE  
 $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_{3-\delta}$  EPITAXIAL FILMS BY SEM IMAGES  
OF THE TRANSVERSAL CHIPPING OF FILM STRUCTURES

The features and drawbacks of the method of the film thickness control by the SEM (JSM-6490 LV) image of a transversal chipping of film structures has been investigated for the series of thin epitaxial films of  $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_{3-\delta}$  (LSMO) produced by magnetron sputtering. We have revealed that high spatial resolution of the SEM images is insufficient to provide acceptable accuracy of the film thickness control, because a sharp contrast at the film – substrate interface is absent. It is shown that an indirect method based on the analysis of data about the relative content of the cationic composition of the film material in the film structure, is more promising for the quantitative control of nanosized film thickness.

**Keywords:** epitaxial films, doped manganites, scanning electron microscope, gravimetric method, energy dispersive spectrometer, nanoscale thickness

**Fig. 1.** The result of the film thickness estimation by the gravimetric method ( $\circ$ ) and by the SEM image of the cross-section of the structure ( $\star$ )

**Fig. 2.** The deposition time dependence of the total cationic content of the film  $C_f$  and the substrate  $C_s$