

05;06;11;12

Размерные эффекты статической проводимости в тонких пленках тантала

© О.А. Новодворский,¹ О.Д. Храмова,¹ К. Венцель,² Й.В. Барта²¹ Институт проблем лазерных и информационных технологий РАН, Шатура, Московская область, Россия² Институт полупроводниковой и микросистемной технологии ТУ Дрезден, Германия
e-mail: onov@laser.nictl.msk.su

(Поступило в Редакцию 23 августа 2004 г.)

Исследован размерный эффект статической проводимости в тонких пленках тантала при импульсном лазерном осаждении в вакууме. Обнаружена осциллирующая зависимость удельного сопротивления от толщины с периодом 5 nm для α -Ta и 5.6 nm для β -Ta, которая трактуется как квантовый размерный эффект в тонких пленках тантала.

Введение

В микроэлектронике наметилась устойчивая тенденция к уменьшению размеров устройств и увеличению в них плотности соединительных линий. Поэтому происходит замена алюминиевых линий на медные и замена оксид/нитридных диэлектриков на диэлектрики с более низкой диэлектрической проницаемостью [1]. Необходимость замены алюминиевых линий на медные вызвала появление работ, исследующих поведение удельных параметров тонкопленочных медных проводников при толщинах, близких к длине свободного пробега электрона в меди (39 nm), с целью выяснения перспектив применения в микросхемах медных проводников размерами меньше длины свободного пробега [2].

Однако вследствие высокой подвижности меди в металлах и полупроводниках необходимо предотвращать диффузию меди в кремний и оксид кремния. Поэтому применение медной технологии приводит к необходимости создания устойчивых диффузионных барьеров, которые должны полностью со всех сторон покрывать медный проводник. К настоящему времени предложены различные технологии применения тантала как одного из самых перспективных материалов для создания барьеров. Известны две кристаллические фазы тантала: объемно центрированная кубическая (α -Ta) и тетрагональная (β -Ta). Физические свойства α -Ta (высокая электропроводность ($\rho = 13 \mu\Omega \cdot \text{cm}$), химическая стойкость, низкий коэффициент диффузии) делают его хорошим материалом для покрытий. Скорость диффузии меди в β -Ta ($\rho = 160\text{--}180 \mu\Omega \cdot \text{cm}$) значительно выше [3].

При создании слоев малой толщины с заданными свойствами, таких как диффузионные барьеры в схемах со сверхминиатюризацией, помимо методов физического и химического осаждения, которые традиционно применяются при выполнении технологических операций по созданию дорожек и заполнению канавок при создании слоев больших толщин, существенное значение приобретает метод лазерно-плазменного напыления. Импульсное излучение лазера дает возможность осуществлять контролируемый массовый вынос в процессе

лазерного испарения (абляции) и очень точно управлять толщиной слоя при осаждении. Высокие энергии частиц позволяют получать пленки с хорошей структурой, а также аморфные пленки толщиной несколько нанометров. Наличие в лазерном эрозионном факеле частиц высоких энергий позволяет получать пленки высокого качества на подложках при комнатной температуре.

Осаждение пленок тантала происходит в одной из двух кристаллических форм (α или β) или в их смеси [4]. В работе [5] проведен сравнительный анализ получения тонких пленок Ta несколькими физическими методами. В частности, в процессе лазерно-плазменного осаждения и установлена существенная роль энергетического спектра ионов при осаждении. На тщательно очищенной поверхности кремния методом лазерного осаждения формируется пленка α -Ta. При значительном уменьшении степени ионизации факела и снижении средней энергии ионов формируется только β -фаза. Отсюда видны как перспективность применения лазеров для создания тонких пленок Ta, так и важность обеспечения контроля и управления энергетическим спектром ионов лазерного факела в процессе напыления [6].

Исследованию размерных эффектов в тонких пленках металлов посвящено много работ. Исследовались тонкие пленки меди, серебра, золота, свинца на поверхности кремния, а также пленки серебра, индия и галлия на подслое из золота и серебра [2]. Послойный рост некоторых пленок демонстрировал осциллирующую зависимость сопротивления от толщины, который интерпретировался как квантовый размерный эффект [7] или как периодическое изменение шероховатости пленки [8].

Созданию диффузионных барьеров для сверхтонких медных линий на основе тантала требует учета и исследований не только размерных, но и квантово-размерных эффектов в тонких пленках Ta, которые дают осциллирующий вид зависимости проводимости от толщины. В настоящей работе проведены измерения сопротивления тонких пленок Ta в зависимости от толщины (в интервале от нескольких до 50 nm) непосредственно в процессе роста при импульсном лазерном осаждении.

Схема и методика эксперимента

Тонкие пленки Ta осаждались методом импульсного лазерного напыления. Этот метод характеризуется высокой степенью контролируемости относительного значения толщины пленок в процессе роста количеством лазерных импульсов [9]. Благодаря высокой мгновенной скорости роста (~ 0.1 mm/s) обеспечивается глубокий эффективный вакуум во время осаждения очередного слоя, и атомы остаточного газа не успевают адсорбироваться на пленке [10]. Загрязнение поверхности, возникающее во время пауз между импульсами, сглаживается высокоэнергетичными частицами фронтальной части плазменного факела, энергия которых достигает более 100 eV [11]. Высокая скорость и плотность образования зародышей при импульсном лазерном осаждении позволяет выращивать этим методом чрезвычайно тонкие сплошные пленки (единицы нанометров). Кроме того, благодаря небольшой величине массы испаряемого вещества за один импульс можно достаточно точно контролировать толщину пленки количеством лазерных импульсов.

Для напыления использовался эксимерный лазер KrF ($\lambda = 248$ nm) с энергией в импульсе до 100 mJ, $f = 10$ Hz. Кварцевой линзой $F = 20$ cm излучение фокусировалось на поверхность мишени в пятно площадью 0.5 mm². В качестве подложек использовались пластинки кремния с ориентацией (100) и размером 20×25 mm. Подложка размещалась параллельно мишени на расстоянии 25 mm так, чтобы центр напыляемой площадки размещался над местом облучения мишени. Для определения скорости роста за один импульс в каждом конкретном случае строились ступенчатые калибровочные зависимости толщины пленки от числа импульсов, по ним определялась толщина осажденного слоя за один импульс. Высота ступенек измерялась на профилометре Alpha Step 500 фирмы „Тепсор“. По данным работы [12], при сопротивлении образца более 1 k Ω результаты измерений двухточечного и четырехточечного метода измерений не различаются. В нашем случае проводимость пленок измерялась с помощью двухточечной схемы непосредственно в процессе их роста. На пластинку кремния предварительно наносились контактные площадки из тантала или платины. Расстояние между ними было равно 5 mm. При помощи серебряных зажимов к контактам подсоединялся вольтметр. Исследуемая пленка наносилась через маску с отверстием 5×10 mm со стороной 10 mm по направлению между электродами. Таким образом, в ходе напыления измерялось сопротивление квадратной площадки 5×5 mm. Были исследованы измерения сопротивления пленок тантала для двух условий осаждения. В первом случае пленка осаждалась непосредственно на подложку, а во втором случае на пленку ниобия толщиной 7.5 nm. Авторы [13] показали, что пленка тантала, осажденная на подслои (интерфейс) ниобия более 3 nm, имеет объемно центрированную кубическую решетку (α -Ta).

Результаты и обсуждение

Скорость осаждения при лазерной абляции зависит от многих параметров, в частности от энергии в импульсе и от расстояния подложки до мишени. Были определены скорости осаждения ниобия и тантала в интервале энергий до 60 mJ в импульсе для толщин пленок до 60 nm. Напылялись серии ступенек с числом импульсов от 500 до 4000 импульсов на ступеньку. Для условий проведения измерений (50 mJ/pulse) получены скорости осаждения ниобия 0.015 nm/pulse, для α -Ta 0.011 nm/pulse и 0.024 nm/pulse для β -Ta. На рис. 1 приведена зависимость скорости осаждения α -Ta от энергии лазерного импульса при неизменной геометрии облучения мишени. Площадь пятна фокусировки 0.5 mm². Можно видеть, что зависимость носит нелинейный характер. При энергии в импульсе менее 30 mJ в приведенном интервале числа импульсов пленка практически не образовывалась.

На рис. 2 приведена характерная зависимость сопротивления пленки тантала от толщины при напылении на кремниевую подложку при комнатной температуре. Участок резкого уменьшения сопротивления соответствует этапу образования сплошной пленки.

На рис. 3 представлена зависимость проводимости пленки α -Ta от толщины. Пленка наносилась на подслои ниобия, поэтому проводимость при нулевой толщине не

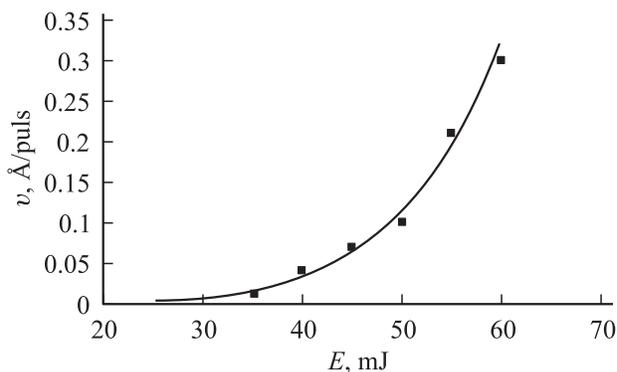


Рис. 1. Зависимость скорости осаждения тантала v от энергии лазерного импульса E .

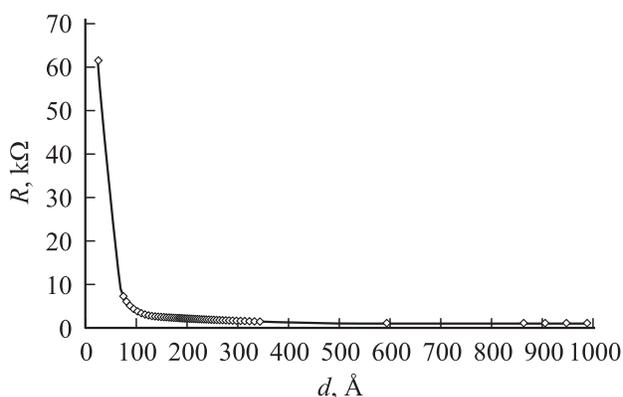


Рис. 2. Зависимость сопротивления пленки β -тантала R от толщины d .

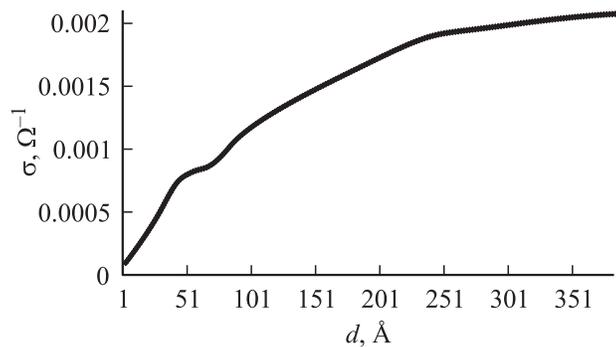


Рис. 3. Зависимость проводимости σ пленки α -Та от толщины d .

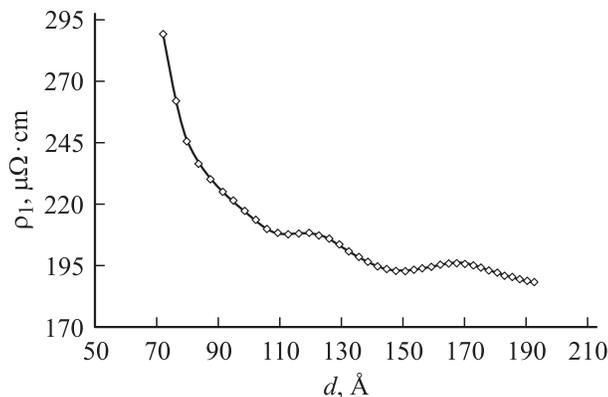


Рис. 4. Зависимость от толщины d удельного сопротивления ρ_1 пленки β -тантала.

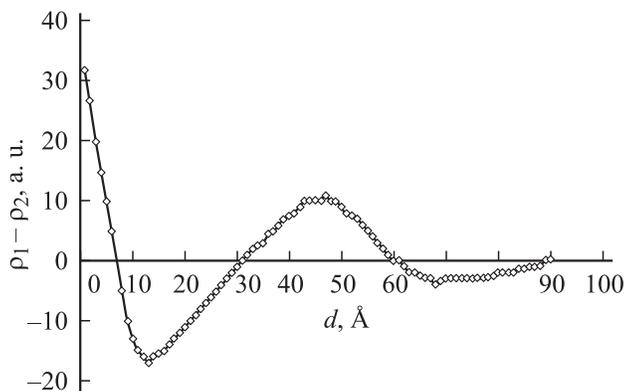


Рис. 5. Зависимость от толщины пленки d величины $(\rho_1 - \rho_2)$ для α -Та (ρ_2 — среднее значение удельного сопротивления пленки).

равна нулю. Можно видеть, что при толщине пленки более 35 nm проводимость меняется слабо. На рис. 4 показана зависимость удельного сопротивления пленки β -Та от толщины. Если из экспериментальной кривой удельного сопротивления вычесть вклад зависимости, определяемый классическим размерным эффектом, который на конечном интервале толщин можно аппроксимировать квадратичным полиномом, то результат будет

представлять вклад квантового размерного эффекта в зависимость удельного сопротивления от толщины. Как видно из рис. 5, на котором представлен такой вклад для α -Та, имеется четко заметная осциллирующая зависимость.

В случае α -Та период осцилляций составлял 5.8 nm, а для β -Та он составил 5 nm. При увеличении толщины пленки висмута в [9] наблюдались осцилляции электропроводности с периодом около 25 nm. Длина волны де Бройля у тантала меньше, чем у висмута, и, по нашим результатам, при комнатной температуре составляет для α -Та и β -Та 11.6 и 10 nm соответственно. Теоретические оценки длины волны де Бройля $\lambda = h/P_F$, где импульс электрона на поверхности Ферми $P_F = h(3n/8\pi)^{1/3}$, h — постоянная Планка, n — концентрация электрона (cm^{-3}) [14], дают величину 5 Å. Аналогичные расхождения измеренных и рассчитанных значений длины волны де Бройля наблюдались и для висмута, где период осцилляций в некоторых экспериментах составлял до 200 nm [15]. При этом длина волны де Бройля на поверхности Ферми, по оценкам, соответствует 40 nm [9]. Учет изменения концентрации носителей пропорционально увеличению удельного сопротивления дает для β -Та увеличение длины волны де Бройля до 2.25 nm, что в несколько раз ниже полученного нами значения. По-видимому, ответ нужно искать в изменении энергии Ферми в объектах малых размеров, которыми являются квантоворазмерные пленки [16].

На наш взгляд, осциллирующие зависимости имеются и в работах по измерению изменения сопротивления в процессе роста пленки для меди [2] и никромового сплава [17], хотя авторы не акцентировали внимание на это явление, а масштаб графиков в этих работах не позволил нам надежно получить из них значение периода осцилляций. С учетом квантования эффектов [16] можно ожидать увеличения длины волны де Бройля в тонких пленках по сравнению с ее значением для массивного образца в металлах.

Заключение

Методом импульсного лазерного напыления получены тонкие пленки тантала. На фоне монотонного уменьшения удельного сопротивления пленки с увеличением ее толщины, вызванного классическим размерным эффектом, обнаружена осциллирующая зависимость с периодом 5 nm для α -Та и 5.6 nm для β -Та. Такое поведение определяется квантовым размерным эффектом в пленках тантала толщиной до 20 nm.

Наблюдение квантового размерного эффекта при изменении сопротивления пленок тантала в процессе роста также является доказательством получения пленок высокого качества (однородность толщины и структуры) при лазерно-плазменном напылении.

Работа выполнена при поддержке Министерства образования и исследований Германии (BMBF) (проект RUS 00/217).

Список литературы

- [1] *Metal Based Thin Films for Electronics* / Ed. K. Wetzig, C.M. Schneider. Ch 2. Thin Films System: Basic Aspects. Wiley-VCX, 2003. 378 p.
- [2] *Liu H.-D., Zhao Y.-P., Ramanath G. et al. // Thin Solid Films.* 2001. Vol. 384. P. 151–156.
- [3] *Gupta D. // Encyclopedia of Applied Physics.* 1993. Vol. 5. P. 75–86.
- [4] *Matson D.W., Merz M.D., Mc Clanhan E.D. // J. Vac. Sci. Technol.* 1992. Vol. A. N 10. P. 1791–1795.
- [5] *Roy R.A., Catania P., Saenger K.L. et al. // J. Vac. Sci. Technol.* 1993. Vol. B11. N 5. P. 1921–1927.
- [6] *Novodvorsky O.A., Khramova O.D., Wenzel C. et al. // J. Appl. Phys.* 2003. Vol. 94. N 5. P. 3612–3625.
- [7] *Сандомирский В.Б. // ЖЭТФ.* 1967. Т. 52. Вып. 1. С. 158–166.
- [8] *Palasantzas G., Zhao Y.P., Wang G.C. et al. // Phys. Rev. B.* 2000. Vol. 61. P. 11 109–11 114.
- [9] *Жерихин А.Н., Шубный Г.Ю., Херизина Л.Н. и др. // Поверхность.* 2000. № 6. С. 79–83.
- [10] *Гапонов С.В., Салащенко Н.Н. // Электрон. пром-сть.* 1976. № 1. С. 11–20.
- [11] *Novodvorsky O.A., Kharamova O.D., Wenzel C. et al. // Optics and Lasers in Engineering.* 2000. Vol. 32. N 5. P. 449–457.
- [12] *Jen S.U., Yu. C.C., Liu C.H. et al. // Thin Solid Films.* 2003. Vol. 434. P. 316–322.
- [13] *Face D.W., Prober D.E. // J. Vac. Sci. Technol. A* 1987. Vol. 5. N 6. P. 3408–3411.
- [14] *Ашкрофт Н.Н., Мермин Н. // Физика твердого тела.* М., 1979. 400 С.
- [15] *Комник Ю.Ф. // Физика металлических пленок.* М., 1979. 273 с.
- [16] *Рытова Н.С. // ФТТ.* 1966. Т. 8. Вып. 6. С. 725–730.
- [17] *Kazi I.H., Wild P.M., Moore T.N. et al. // Thin Solid Films.* 2003. Vol. 433. P. 337–343.