# 05;06

# Влияние мощности, переносимой атомарным пучком, на формирование границы раздела Fe/Si (111) 7 × 7

# © Н.И. Плюснин, В.М. Ильященко, С.В. Крылов, С.А. Китань

Институт автоматики и процессов управления ДВО РАН, Владивосток Владивостокский государственный университет экономики и сервиса E-mail: plusnin@iacp.dvo.ru

### Поступило в Редакцию 16 ноября 2006 г.

Методом электронной оже-спектроскопии, спектроскопии характеристических потерь энергии электронов и дифракции медленных электронов исследованы начальные стадии роста и взаимодействие железа с монокристаллической подложкой кремния. Исследования проводили в процессе осаждения железа из двух молекулярно-лучевых источников со скоростями осаждения 0.01 и 6 nm/min и соответственно энергиями потока 0.14 и 0.18 eV. Обнаружено, что в первом случае происходит послойный рост железа, а во втором послойный рост моносилицида железа. Полученные результаты показывают существенное влияние мощности энергетического потока молекулярного пучка на образование силицида на границе раздела пленка-подложка в процессе ее формирования.

PACS: 34.50.Dy, 81.15.Hi

Процесс формирования границы раздела переходный металл-кремний, который сопровождается атомным перемешиванием на границе раздела при комнатной и более низких температурах, изучался не одно десятилетие (см. обзоры [1-3]). С одной стороны, это связано с тем, что гетероструктуры переходной металл (силицид)-кремний находят широкое применение в микроэлектронике [4], а с другой — с тем, что процесс перемешивания оказался настолько сложным и неоднозначным, что изучается и поныне (см., например, [5]).

Попытки объяснить образование силицидной области на границе раздела активацией взаимодиффузии за счет тепла, высвобождаемого при реакции атомов металла с кремнием, приводили к простой модели с независимой от скорости осаждения диффузией на границе раздела,

79

что не согласовывалось с экспериментом [6]. Стало ясно, что нужен более детальный учет параметров потока осаждаемых атомов. Был предложен механизм процесса, в котором учитывалось наложение латеральных тепловых фронтов от отдельных атомов в молекулярном пучке [6]. Это наложение приводит к сплошному тепловому каналу на поверхности и тем самым к скачкообразному увеличению длины поверхностной диффузии по отношению к объемной при определенной плотности потока атомов. Этот эффект зависит от поверхностной теплопроводности подложки, которая зависит от состояния поверхности и существенно подвержена влиянию различных адсорбатов.

Тем не менее эксперименты по низкоэнергетическому осаждению Cr на Si показали, что наряду с энергией реакции и плотностью потока существенную роль играет кинетическая или тепловая энергия атомов в молекулярном пучке [7,8]. В этих экспериментах, благодаря большой площади источника и малому расстоянию источник-подложка, монослои чистого хрома на кремнии росли за счет пониженной энергии пучка. Вместе с тем, когда источник — точечный и имеет большое расстояние до подложки, то энергия пучка — высокая, а скорость осаждения — низкая и металл обычно перемешивается с кремнием с формированием градиента состава по глубине. Возникает вопрос: а что будет происходить при повышенной энергии пучка и одновременно скорости осаждения? Возможно, что в этом случае мощности теплового потока, приносимого пучком, будет достаточно для активации послойного роста силицида. Такой послойный рост силицида мог бы быть дополнительным доказательством роли кинетической энергии пучка в формировании границы раздела.

Цель данной статьи — проверить эту гипотезу экспериментально. Наиболее подходящей системой для этой проверки является система Fe-Si. Действительно, как известно, железо имеет низкую энергию активации диффузии в кремний, причем его рост не всегда начинается с образования чистого металла, как в работе [9], а чаще начинается с образования сверхтонкой (4-5 монослоев) пленки силицидоподобной фазы [10-13]. К сожалению, по литературным данным невозможно обнаружить связь процесса формирования границы раздела с параметрами пучка, так как не во всех работах указывается скорость осаждения, а температура источника при напылении и вовсе не указывается. Кроме того, прочие условия эксперимента в разных работах различны.

В данной статье показано, что в системе Fe–Si при низкой температуре источника и слабом потоке растет чистый металл, а при значительном увеличении температуры источника и плотности потока — силицид состава FeSi. Причем этот силицид растет послойно в широком диапазоне толщин (0.1-1 nm), не меняя состава, что говорит о значительной движущейся силе массопереноса, обусловленной температурой и плотностью потока.

Эксперимент проводили в сверхвысоковакуумной (базовое давление 5 · 10<sup>-10</sup> mmHg) камере, содержащей анализаторы ЭОС и ДМЭ фирмы Рибер (RIBER), манипулятор образца с четырьмя степенями свободы и блок молекулярно-лучевых источников. Подложкой служила пластина кремния ориентации (111) с удельным сопротивлением 4.5 Ω · cm. Перед загрузкой в камеру подложку очищали кипячением в толуоле, а после загрузки, перед напылением, — термическим отжигом в течение 2-3 min при 1523 К с последующим плавным понижением температуры до комнатной. Напыление железа производили из двух разных источников. Первый был выполнен в виде вольфрамовой (W) спирали с навеской из брусочка Fe. Такой источник позволил обеспечить низкую скорость осаждения (0.01 nm/min) и температуру источника (1373 К). Во втором эксперименте надо было обеспечить максимально возможную температуру (1723 К) источника и скорость осаждения (порядка 6 nm/min). Поэтому в качестве стабильного с возможностью многократного использования источника был использован источник из пленки Fe определенной толщины, наносимой на Ta ленту перед каждым испарением (по аналогии с источником Cr [7,8]). Источником для нанесения на Та ленту служил вышеописанный источник в виде W спирали. Пленку Fe на Ta ленте готовили путем ее осаждения в течение 20 min из W спирали. Ток нагрева W спирали при осаждении составлял 5.5 А.

Экспозицию испаряемой порции для обоих источников задавали с помощью электронного ключа одинаковым (1 min — для спирали и 1 s для ленты) временем нагрева спирали (ток нагрева 5.5 A) или ленты (ток нагрева 32 A). При малых начальных толщинах использовались меньшие экспозиции (0.25 min — для спирали и 0.33 s — для ленты). Из-за этого температура нагрева источника не достигала стационарной для данного тока нагрева, что приводило к заниженным по сравнению с последующими порциями толщинам осажденных пленок. Это учитывалось при интерпретации экспериментальных данных. Излучение

от источников приводило к некоторому нагреву подложки кремния, и температура подложки кремния повышалась при напылении: в первом эксперименте — до 403 K, а во втором — до 323 K. Величину порций определяли путем калибровки скорости осаждения или непосредственно по кварцевым микровесам.

После каждого напыления снимали спектры ЭОС и СХПЭЭ при минимально-возможной энергии первичных электронов (300 eV), а также фотографировали картины ДМЭ. Картины ДМЭ для чистой поверхности Si (111)  $7 \times 7$  показывали четкие рефлексы  $1 \times 1$  и  $7 \times 7$ . После 0.075 nm Fe в первом эксперименте и 0.045 nm Fe во втором рефлексы  $7 \times 7$  исчезали и на картинах ДМЭ оставались только рефлексы  $1 \times 1$ . Затем рефлексы  $1 \times 1$  при 0.2 nm в первом эксперименте и при 0.09 nm во втором замещались фоном. В спектрах ХПЭЭ и ЭОС наблюдались затухание пиков от подложки и появление новых пиков: от Fe — в первом эксперименте и FeSi — во втором. Более подробно с описанием спектров ХПЭЭ и ЭОС можно ознакомиться в работе [14].

На рис. 1 представлены зависимости интенсивности оже-пиков Si и Fe от толщины соответственно для первого (квадратики) и второго (кружки) экспериментов. Для сравнения пунктирной и сплошной кривыми показаны также теоретические кривые для послойного роста Fe (кривые 1 и 4) и FeSi (кривые 2 и 3) соответственно. Как видно из рис. 1, а также как показывает разная скорость затухания картин ДМЭ, рост пленки соответствовал с некоторой задержкой при малых экспозициях: в первом эксперименте — послойному росту Fe, а во втором — FeSi. Задержка кривых на рис. 1 при малых экспозициях была вызвана тем, что температура источников не достигала стационарной, из-за чего реальная толщина пленки была значительно меньше толщины, оцененной по времени экспозиции.

Сравнение представленных здесь двух экспериментов показывает, что температуры испарения железа 1373 и 1723 К и скорости осаждения 0.01 и 6 nm/min приводят к двум предельным режимам роста. В первом случае — это послойный рост пленки железа, а во втором — послойный рост пленки моносилицида железа. Такой переход от послойного роста железа к послойному росту силицида можно объяснить влиянием теплового потока, подводимого атомным пучком к подложке. На рис. 2 показана схематическая иллюстрация процесса осаждения. При малой температуре источника — 1373 К (малой кинетической энергии — около 0.14 eV) и малой скорости осаждения — 0.01 nm/min



**Рис. 1.** Зависимости интенсивности оже-пиков Si (заштрихованные точки) и Fe (пустые точки) от толщины соответственно для первого (квадратики) и второго (кружки) экспериментов. Пунктирной и сплошной кривыми показаны теоретические кривые для послойного роста Fe (кривые 1 и 4) и FeSi (кривые 2 и 3) соответственно. Кривые 1 и 4 смещены на 0.05 nm вправо, для случая начала роста с 0.05 nm.

атомы железа успевают отдавать свою энергию в объем решетки до прихода соседнего атома и не преодолевают поверхностный энергетический барьер для проникновения внутрь решетки кремния. Это приводит к тому, что они находятся в некотором слабо возбужденном состоянии на поверхности и тем самым обеспечивают рост пленки железа.

При температуре источника 1723 К атомы железа осаждаются с более высокой кинетической энергией (0.18 eV), которая обеспечивает части атомов возможность проникновения в объем решетки кремния. Оставшаяся часть атомов рассеивается на поверхностном барьере и переходит в сильно возбужденное адсорбированное состояние на поверхности. При этом за счет высокой скорости осаждения (6 nm/min)



**Рис. 2.** Иллюстрация процесса взаимодействия молекулярного пучка с подложкой для: *а* — малых скоростей осаждения и температур источника и *b* — больших. В первом случае идет рост Fe, а во втором — FeSi.

тепловые фронты от атомов накладываются друг на друга и приповерхностный слой решетки не успевает остыть до прихода следующих атомов. В результате обеспечивается высокая диффузионная подвижность атомов в приповерхностном слое решетки. Кроме того, поверхностный энергетический барьер с проникновением атомов внутрь

решетки понижается, что дополнительно способствует проникновению в нее осаждаемых атомов.

Отметим, что в литературе уже исследовалось влияние энергетики пучка на усиление силицидообразования, но при кинетической энергии атомов  $1-10 \,\mathrm{eV}$  [15]. Что касается поверхностного энергетического барьера, то его роль обсуждалась в теоретических исследованиях в свете различной вероятности перемешивания для различного типа атомов переходного металла [16,17], а также влияния на этот барьер пассивирования поверхности водородом [18].

Таким образом, результаты настоящего исследования показывают, что увеличение мощности энергетического потока оказывает существенное влияние на преодоление поверхностного энергетического барьера для перемешивания атомов железа с подложкой и приводит к активации послойного роста моносилицида железа на кремнии.

### Список литературы

- [1] Brillson L.J. // Surface Science Report. 1982. V. 2. N 2. P. 123.
- [2] Ту К., Мейер Дж. // Тонкие пленки. Взаимная диффузия и реакции / Под ред. Поута Дж., Ту К. и Мейера Дж. М.: Мир, 1982. С. 576.
- [3] *Nicolet M.-A., Lau S.S. //* LVSI Electronics: Microstructure Science / Ed. by Einspruch N. New York: Academic Press, 1983. V. 6. P. 300.
- [4] Reader A.H., van Ommen A.H., Weijs P.J.W., Wolters R.A.M., Oostra D.J. // Rep. Prog. Phys. 1992. V. 56. P. 1397–1467.
- [5] Гомоюнова М.В., Пронин И.И., Малыгин Д.Е., Соловьев С.М., Вялых Д.В., Молодцов С.Л. // ЖТФ. 2005. Т. 75. № 9. С. 106–110.
- [6] Плюснин Н.И., Миленин А.П. // Поверхность. Рентгеновские, синхротронные и нейтронные исследования. 1997. № 3. С. 36–44.
- [7] Plusnin N.I., Iliyashenko B.M., Milenin A.P. // Phys. Low-Dim. Struct. 2002.
  V. 11/12. P. 39–48.
- [8] Plusnin N.I., Milenin A.P., Iliyashenko B.M., Lifshits V.G. // Phys. Low-Dim. Struct. 2002. V. 9/10. P. 129–146.
- [9] Rührnschopf K., Borgmann D., Wedler G. // Thin Solid Films. 1996. V. 280.
  P. 171–177.
- [10] Gallego J.M., Garcia J.M., Alvarez J., Miranda R. // Phys. Rev. B. 1992. V. 46. P. 13 339–13 344.
- [11] Alvares J., Vazquez de Parga A.L., Hinarejios J.J., de la Figuera J., Michel E.G., Ocal C., Miranda R. // Phys. Rev. B. 1993. V. 47. P. 16048–16051.

- [12] Kläsges R., Carbone C., Eberhardt W., Pampuch C., Rader O., Kachel T., Gudat W. // Phys. Rev. B. 1997. V. 56. P. 10 801–10 804.
- [13] Wei W., Kutschera M., Starke U., Mozaffari M., Reshöft K., Köhler U., Heinz K. // Surface Science. 1997. V. 337–379. P. 861–865.
- [14] Il'yashenko V.M., Kitan' S.A., Krylov S.V., Plusnin N.I. // Phys. Low-Dim. Struct. 2006. V. 2. P. 42–46.
- [15] Knowles M.P., Leone S.R. // Chemical Physics Letters. 1996. V. 268. P. 217-222.
- [16] Zeng-ju T., Satoko C., Ohnishi S. // Physical Review B. 1987. V. 36. P. 6390.
- [17] Satoko C., Ohnishi S., Zeng-ju T. // Applied Surface Science. 1988. V. 33/34.
  P. 277.
- [18] Ma L., Wang J., Jijun Zhao, Wang G. // Chemical Physical Letters. 2005. V. 414. P. 500–504.