

Состав и морфология поверхности Si(111) с поверхностной пленкой SiO₂ разной толщины

© Б.Е. Умирзаков^{1,2}, С.Б. Донаев¹, Р.М. Ёркулов², Р.Х. Ашуров², В.М. Ротштейн²

¹ Ташкентский государственный технический университет им. И. Каримова, 100095 Ташкент, Узбекистан

² Институт ионно-плазменных и лазерных технологий им. У. Арифова, 100125 Ташкент, Узбекистан

E-mail: sardor.donaev@gmail.com

Поступила в Редакцию 7 апреля 2021 г.

В окончательной редакции 21 июня 2021 г.

Принята к публикации 6 июля 2021 г.

Изучены состав, морфология, электронная структура нанопленки SiO₂ разной толщины, созданной термическим окислением на поверхности Si(111). Показано, что до толщины 30–40 Å пленка имеет островковый характер. При $d \geq 60$ Å формируется однородная сплошная пленка SiO₂, стехиометрическая шероховатость поверхности которой не превышает 1.5–2 нм. Независимо от толщины пленок SiO₂ заметная взаимодиффузия атомов на границе SiO₂–Si не наблюдается. Определены закономерности изменения состава, степень покрытия поверхности, энергии плазменных колебаний при изменении толщины пленок SiO₂/Si(111) в пределах от 20 до 120 Å.

Ключевые слова: термическое окисление, нанофазы, нанопленки, плазменное колебание, шероховатость поверхности, оже-пики, рамановские спектры, оптически-фононная мода, островковый рост.

DOI: 10.21883/FTP.2021.11.51559.9661

1. Введение

Гетеропленочные структуры типа SiO₂/Si и многослойные системы на их основе широко используются и перспективны для создания новых приборов твердотельной электроники, в частности, при разработке сверхвысокочастотных МОП-транзисторов, интегральных схем, элементов памяти и дисплеев, фотопреобразователей, солнечных элементов и др. Такие структуры в основном создаются методами термического окисления, ионно-плазменного осаждения, ионной имплантации. В настоящее время хорошо изучены состав, структура и свойства пленок SiO₂/Si различной толщины, полученные различными методами [1–5]. При этом наиболее однородные нанопленки ($d \leq 50$ – 60 Å) SiO₂, как в случае силицидов металлов [6–9], получены методом низкоэнергетической ионной имплантации в сочетании с отжигом [4,5]. Наличие в тонких пленках SiO₂ и силицидов металлов избыточных атомов или кластеров кремния приводит к существенному изменению их физических свойств [10–17]. В случае тонких пленок ($d \leq 10$ нм) SiO₂/Si может происходить диффузия атомов Si в пленку SiO₂. Однако до сих пор нет достоверных сведений о динамике изменения морфологии, состава, кристаллической и электронной структуры нанопленок SiO₂/Si толщиной от $d \approx 20$ до 100 Å, полученных методом термического окисления. Решение этой проблемы являлось основной целью данной работы.

2. Методика эксперимента

Объектами исследования являлись аморфные пленки SiO₂, созданные на поверхности Si(111) методом тер-

мического окисления в атмосфере сухого кислорода. Исследования состава, электронной структуры, эмиссионных и оптических свойств проводились с использованием методов оже-электронной спектроскопии (ОЭС), спектроскопии характеристических потерь энергии электронов (СХПЭЭ), ультрафиолетовой фотоэлектронной спектроскопии (УФЭС) на одном и том же сверхвысоковакуумном приборе при $P = 10^{-7}$ Па. Морфология поверхности и кристаллическая структура исследовались с помощью стандартных установок растровой электронной микроскопии (РЭМ) SUPRA-40, атомно-силовой микроскопии (ХЕ-200) и рамановской спектроскопии. Профили распределения атомов по глубине снимались методом ОЭС в сочетании с травлением поверхности ионами Ar⁺. В основном использованы пленки толщиной $d = 20, 40, 60, 80, 100$ и 500 Å. Перед исследованием образцы вакуумировались при $T = 900$ К в течение 4–5 ч при давлении не ниже 10^{-7} Па.

3. Результаты экспериментов и обсуждения

На рис. 1 приведено РЭМ-изображение поверхности пленки SiO₂/Si с $d \approx 20$ Å. Видно, что пленка имеет островковый характер.

Средние поверхностные размеры островков составляют 40–50 нм. Дальнейшие исследования показали, что с ростом времени окисления размеры островков увеличиваются, начиная с $d \approx 40$ Å происходит перекрывание границ соседних островков и формируется сплошная пленка SiO₂. На рис. 2 приведены оже-спектры пленки

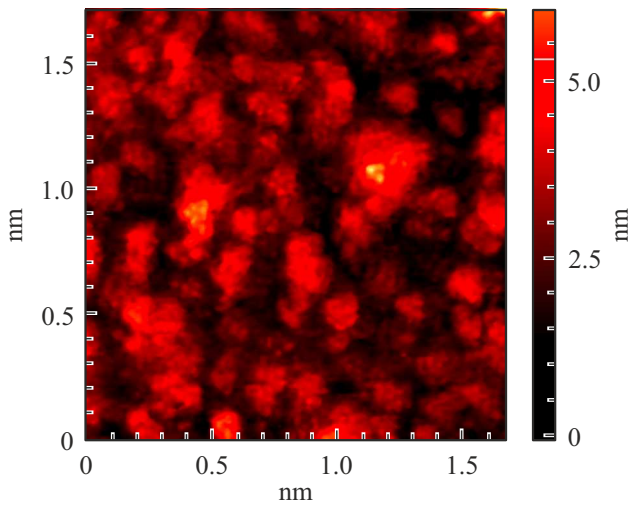


Рис. 1. РЭМ-изображение поверхности пленки Si с пленкой SiO₂ толщиной 20 Å.

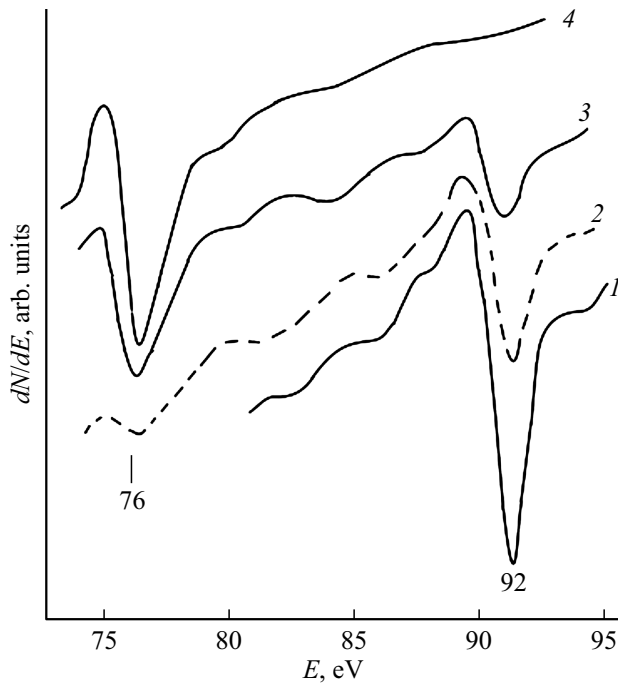


Рис. 2. Оже-электронные спектры Si(111) с нанопленкой SiO₂ разной толщины, d , Å: 1 — 0, 2 — 20, 3 — 40, 4 — 80.

SiO₂/Si(111) разной толщины, записанные в области $E \approx 70-100$ эВ.

Оже-спектры записывались при энергии электронов первичного пучка $E_p = 2500$ эВ. Уже при $d = 20$ Å на оже-спектре появляется малоинтенсивный пик SiO₂ с $E \approx 76$ эВ. С ростом d интенсивность пика SiO₂ увеличивается и при $d \approx 60$ Å достигает максимального значения, а интенсивность пика Si уменьшается до нуля (в пределах чувствительности оже-спектрометра).

Как видно из рис. 3, интенсивность I_{SiO_2} до $d \approx 40$ Å увеличивается почти линейно, а в интервале $d = 40-80$ Å — экспоненциально. При $d > 80$ Å ин-

тенсивность I_{SiO_2} практически не меняется, а оже-пик чистого Si полностью исчезает. Анализ спектров оже-электронов совместно с РЭМ-изображениями показали, что в интервале $d \approx 0-40$ Å линейный рост I_{SiO_2} в основном связан с увеличением размеров поверхностных островков, т.е. со степенью покрытия поверхности Si островками SiO₂. Вследствие того что при $d \approx 40$ Å начинается формироваться сплошная пленка SiO₂, уве-

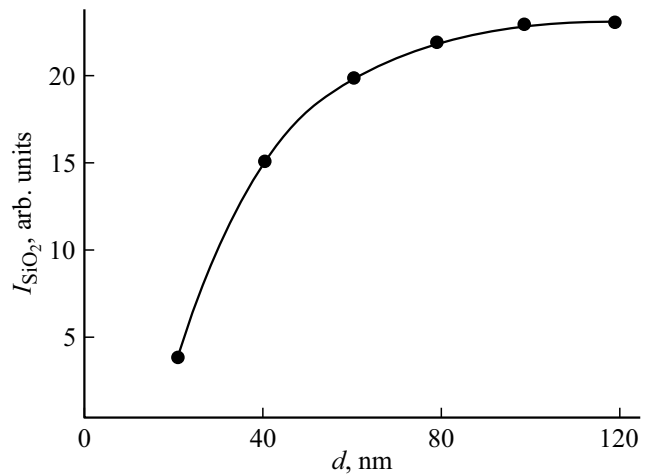


Рис. 3. Зависимость интенсивности оже-пика SiO₂ ($E = 76$ эВ) от толщины пленки SiO₂.

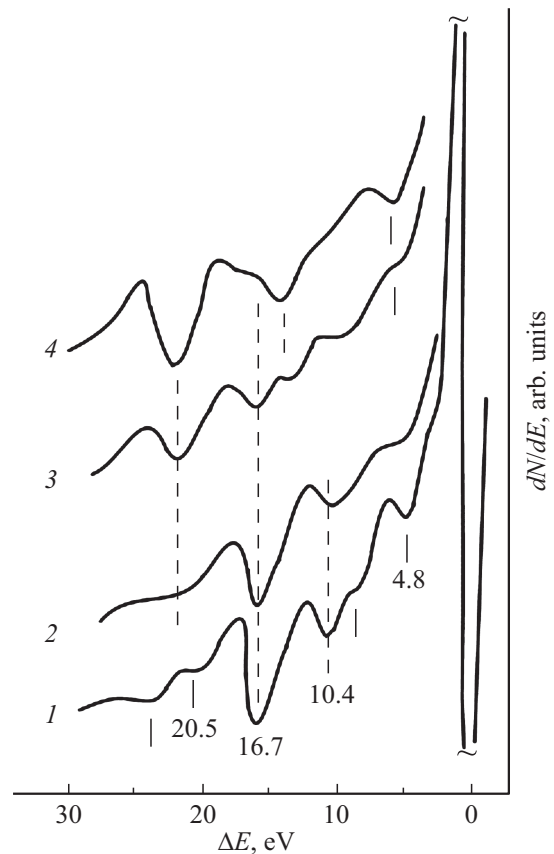


Рис. 4. СХПЭЭ Si с пленкой SiO₂ с толщиной d , Å: 1 — 0, 2 — 20, 3 — 40, 4 — 60.

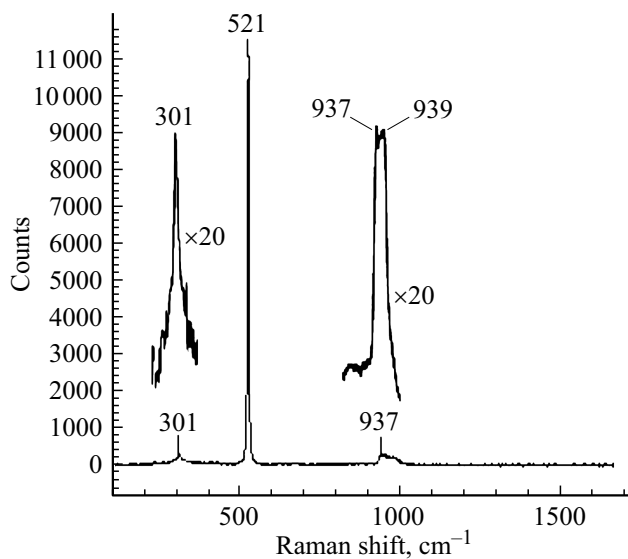


Рис. 5. Рамановские спектры Si(111) с пленкой SiO₂ толщиной 100 Å.

личение I_{SiO_2} в интервале $d \approx 40\text{--}80$ Å объясняется уменьшением влияния подложки (кремния) на выход вторичных электронов. При $d \geq 80$ Å оже-электроны выходят только из пленки SiO₂. Из этих данных видно, что в случае тонких пленок SiO₂/Si заметная диффузия атомов подложки в оксидную пленку не происходит.

Спектры ХПЭЭ также дают богатую информацию о составе поверхности и о плотности состояния валентных электронов. В частности, измерение энергии плазмонов может служить для идентификации образцов. На рис. 4 приведены СХПЭЭ пленок SiO₂/Si(111) разной толщины.

Видно, что при увеличении толщины пленок вклад Si (подложки) на выход электронов с характеристическими потерями уменьшается, а от пленки SiO₂ соответственно увеличивается. При $d_{\text{SiO}_2} = 20$ Å на спектре наряду с интенсивными пиками плазменных колебаний ($\hbar\omega_s$, $\hbar\omega_v$, $2\hbar\omega_s$) Si появляется малоинтенсивный пик объемного плазмона SiO₂ с $E \approx 22$ эВ. С ростом d интенсивность этого пика увеличивается, а интенсивность пиков Si уменьшается. Начиная с $d = 40$ Å обнаруживается еще один пик при $E = 14.5$ эВ, связанный с возбуждением поверхностного плазмона SiO₂. По-видимому, возбуждение поверхностного плазмона SiO₂ происходит после образования сплошной пленки. При $d \approx 60$ Å полностью устанавливается спектр ХПЭЭ, характерный для массивных пленок SiO₂.

На рис. 5 приведены рамановские спектры Si(111) с пленкой SiO₂ толщиной 100 Å. Видно, что при ~ 520 см⁻¹ обнаруживается очень интенсивный пик оптической фононной моды чистого монокристаллического Si. Пик оптической фононной моды Si 2-го порядка ($\sim 943\text{--}980$ см⁻¹) сильно уширяется, что связано с наличием на поверхности Si тонкого аморфного слоя SiO₂.

4. Заключение

На основе анализа полученных в работе результатов можно сделать следующие выводы. Пленки SiO₂, полученные методом термического окисления Si до толщины ~ 40 Å имеют островковый характер, при $d \geq 60$ Å формируется сплошная аморфная однородная пленка. Во всех случаях пленки SiO₂ имеют хорошую стехиометрию и не наблюдается взаимодиффузия атомов на границе SiO₂/Si(111). Уже при толщине 20 Å на спектре ХПЭЭ появляется пик при $\Delta R \approx 22$ эВ, характерный для объемного плазмона SiO₂, а при толщине 40 Å — поверхностного плазмона.

Конфликт интересов

Авторы заявляют об отсутствии конфликта интересов.

Список литературы

- [1] K. Hoppe, W.R. Fahrner, D. Fink, S. Dhamodoran, A. Petrov, A. Chandra, A. Saad, F. Faupel, V.S.K. Chakravadhanula, V. Zaporotchenko. Nucl. Instr. Meth. B, **266**, 1642 (2008).
- [2] Д.Г. Громов, О.В. Пятилова, С.В. Булярский, А.Н. Белов, А.А. Раскин. ФТТ, **55** (3), 562 (2013).
- [3] Y. Kanemitsu, T. Kushida. Appl. Phys. Lett., **77** (22), 3550 (2000).
- [4] Z.A. Isakhanov, Z.E. Mukhtarov, B.E. Umirzakov, M.K. Ruzibaeva. Techn. Phys., **56** (4), 546 (2011).
- [5] B.E. Umirzakov, D.A. Tashmukhamedova, E.U. Boltaev, A.A. Dzhurakhalov. Mater. Sci. Engin. B: Solid-State Mater. Adv. Technol., **101** (1–3), 124 (2003).
- [6] B.E. Umirzakov, D.A. Tashmukhamedova, D.M. Muradkabilov, K.K. Boltaev. Techn. Physics, **58** (6), 841 (2013).
- [7] B.E. Umirzakov, S.B. Donaev. J. Surf. Investigation: X-ray, Synchrotron and Neutron Techniques, **11** (4), 746 (2017).
- [8] A.S. Rysbaev, Z.B. Khuzhaniyazov, A.M. Rakhimov, I.R. Bekpulatov. Techn. Phys., **59** (10), 1526 (2014).
- [9] A.S. Risbaev, J.B. Khujaniyazov, I.R. Bekpulatov, A.M. Rakhimov. J. Surf. Investigation: X-ray, Synchrotron and Neutron Techniques, **11** (5), 994 (2017).
- [10] A.S. Rysbaev, Z.B. Khuzhaniyazov, M.T. Normuradov, A.M. Rakhimov, I.R. Bekpulatov. Techn. Phys., **59** (11), 1705 (2014).
- [11] S.B. Donaev, A.K. Tashatov, B.E. Umirzakov. J. Surf. Investigation: X-ray, Synchrotron and Neutron Techniques, **9** (2), 406 (2015).
- [12] Ю.К. Ундолов. ФТП, **49** (7), 887 (2015).
- [13] M. Hamasaki, T. Adachi, S. Wakayama, M. Kikuchi. J. Appl. Phys., **47** (7), 3987 (1978).
- [14] О.Б. Гусев, А.Н. Поддубный, А.А. Прокофьев, И.Н. Ясевич. ФТП, **47** (2), 147 (2013).
- [15] S. Takeoka, M. Fujii, S. Hayashi. Phys. Rev. B, **62** (24), 16820 (2000).
- [16] Y.S. Ergashov. Techn. Phys., **62** (5), 777 (2017).
- [17] R.K. Ashurov, T.K. Turdaliev, I.K. Ashurov. Appl. Sol. Energy, **53**, 334 (2017).

Редактор Г.А. Оганесян

Composition and morphology of Si(111) surface with SiO₂ film of different thickness

*B.E. Umirzakov^{1,2}, S.B. Donaev¹, R.M. Yorkulov²,
R.Kh. Ashurov², V.M. Rotstein²*

¹ Tashkent State Technical University
named after I. Karimov,
100095 Tashkent, Uzbekistan

² Institute of Ion-Plasma and Laser Technologies
named after U. Arifov,
100125 Tashkent, Uzbekistan

Abstract The composition, morphology, and electronic structure of SiO₂ nanofilms of various thicknesses, created by thermal oxidation on the Si(111) surface, have been studied. It is shown that up to a thickness of 30–40 Å, the film has an island character. At $d \geq 60$ Å, a homogeneous continuously film of SiO₂ is formed and the stoichiometric surface roughness of which does not exceed 1.5–2 nm. Regardless of the film thickness of the SiO₂ appreciable interdiffusion of atoms at the interface SiO₂–Si not observed. The regularities of the change in the composition, the degree of surface coverage, and the energy of plasma oscillations with a change in the thickness of the SiO₂/Si(111) films in the range from 20 to 120 Å have been determined.