

文章编号: 1007-4627(2008)01-0044-04

# 快重离子辐照引起Ni/SiO<sub>2</sub>界面原子混合及相变研究<sup>\*</sup>

刘纯宝<sup>1,3</sup>, 王志光<sup>1, #</sup>, 魏孔芳<sup>1,3</sup>, 臧航<sup>1,3</sup>, 姚存峰<sup>1</sup>, 马艺准<sup>1</sup>, 盛彦斌<sup>1</sup>,  
缙洁<sup>1</sup>, 金运范<sup>1</sup>, A. Benyagoub<sup>2</sup>, M. Toulemonde<sup>2</sup>

(1 中国科学院近代物理研究所, 甘肃 兰州 730000;

2 CIRIL, BP5133, 14070 Caen Cedex 05, France;

3 中国科学院研究生院, 北京 100049)

**摘要:** 在室温下用308 MeV的Xe离子和853 MeV的Pb离子辐照Ni/SiO<sub>2</sub>样品, 用卢瑟福背散射和X射线衍射技术对样品进行了分析。通过分析Ni/SiO<sub>2</sub>样品中元素成分分布和结构随离子辐照剂量和电子能损的变化, 探索了离子辐照在Ni/SiO<sub>2</sub>样品中引起的界面原子混合与结构相变现象。实验结果显示, Xe和Pb离子辐照均能引起明显的Ni原子向SiO<sub>2</sub>基体的扩散并导致界面附近Ni, Si和O原子的混合。实验观测到低剂量Xe离子辐照可产生NiSi<sub>2</sub>相, 而高剂量Xe离子辐照则导致了Ni<sub>3</sub>Si和NiO相的形成。根据热峰模型, Ni原子的扩散和新相的形成可能由沿离子入射路径强电子激发引起的瞬间热峰过程驱动。

**关键词:** 快重离子辐照; 界面原子混合与结构相变; 卢瑟福背散射; X射线衍射

**中图分类号:** O571.33; O792; O582 **文献标识码:** A

## 1 引言

在半导体领域, 随着集成电路制造工艺的不断提高, 栅极、源极和漏极电阻的增大已经成为业界必须解决的课题。镍硅化物由于具有薄层电阻小、应力小和易形成浅结等优点, 能够适应集成电路特征尺寸不断缩小的趋势。通过改变镍硅化物的合金成分, 可使PMOS和NMOS晶体管实现较宽的阈值电压控制范围, 有效地降低阈下电流和开关电极漏电流, 从而有效提高晶体管电流驱动能力等。镍硅化物所具有的这些优势, 使其成为深亚微米集成电路中最有前景的硅化物之一, 其制作工艺和性能是目前材料科学领域研究的热点。

荷能离子穿过固体界面, 可以引起界面原子迁移而导致界面附近原子混合甚至发生结构相变。实验结果表明, 低能离子辐照引起的界面原子混合效应主要由入射离子与靶材料原子之间的弹性碰撞引起的直接原子移位所决定<sup>[1-7]</sup>。到目前为止, 高能离子辐照引起固体界面原子混合的研究较少, 但已

有实验结果显示, 在高速离子辐照引起的界面原子混合过程中, 强电子激发起非常重要的作用<sup>[8, 9]</sup>。本工作利用快重离子辐照Ni/SiO<sub>2</sub>样品, 研究了Ni-SiO<sub>2</sub>界面附近的原子混合和镍硅化物形成及其与辐照实验参数的关系, 并对快重离子辐照引起界面原子混合和相变的机理进行了初步探讨。

## 2 实验

用磁控溅射法在单晶SiO<sub>2</sub>(100)面上沉积厚度约300 nm的Ni薄膜, 溅射用Ni靶的纯度为99.99%, 样品室本底真空达10<sup>-5</sup> Pa, 薄膜在10<sup>-2</sup> Pa下生长。在室温下, 用308 MeV的Xe离子或853 MeV的Pb离子辐照制备Ni/SiO<sub>2</sub>样品。Xe离子辐照在中国科学院近代物理研究所的扇聚焦回旋加速器(SFC)上进行, 而Pb离子辐照在法国重离子激光交叉学科研究中心(CIRIL-GANIL, Caen)的中能离子辐照终端上完成。实验参数如表1所示, 其中 $E$ ,  $\Phi$ ,  $S_e$ ,  $S_n$ ,  $R_p$ 分别为入射离子能量、辐照剂量、电子能损、核能损和离子投影射程,  $S_e$ ,  $S_n$

\* 收稿日期: 2008-01-28; 修改日期: 2008-03-27

\* 基金项目: 国家自然科学基金资助项目(10125522, 10475102); 中国科学院西部之光联合学者资助项目(O605110XL0)

作者简介: 刘纯宝(1977-), 男(汉族), 山东德州人, 博士研究生, 从事重离子与材料科学研究。

# 通讯联系人: 王志光, E-mail: zhgwang@impcas.ac.cn

和R<sub>p</sub>的数值用SRIM2003软件<sup>[10]</sup>计算得到，其中，S<sub>e</sub>和S<sub>n</sub>为Ni/SiO<sub>2</sub>界面处的数值。

表1 高能Xe和Pb离子辐照Ni/SiO<sub>2</sub>的实验参数(符号定义如文中所示)

Ion	E/MeV	Φ (ions/cm <sup>2</sup> )	Ni			SiO <sub>2</sub>		
			S <sub>e</sub> /(keV/nm)	S <sub>n</sub> /(keV/nm)	R <sub>p</sub> /μm	S <sub>e</sub> /(keV/nm)	S <sub>n</sub> /(keV/nm)	R <sub>p</sub> /μm
Xe	308	1.0 × 10 <sup>12</sup>	44.92	0.127 4	10.62	16.47	0.038 0	26.43
		5.0 × 10 <sup>12</sup>						
Pb	853	5.0 × 10 <sup>11</sup>	67.34	0.169 7	18.03	24.17	0.050 0	46.52

辐照后的Ni/SiO<sub>2</sub>样品用卢瑟福背散射能谱(RBS)技术和X射线衍射(XRD)方法进行了分析。RBS分析在北京大学重离子物理研究所的串列加速器上进行，采用2.022 MeV的He离子作为分析束流，背散射角度为165°。XRD分析是用荷兰帕纳科公司生产的X'pert Pro型X射线衍射谱仪完成的，射线为Cu的K<sub>α</sub>线，波长为0.154 2 nm，测试方式为5°掠角扫描，步长0.02°。

### 3 实验结果与讨论

#### 3.1 RBS 分析

图1 给出了Ni/SiO<sub>2</sub>样品经308 MeV的Xe离子辐照后的RBS谱。其中263和364道附近的前沿分别对应样品界面处Si和外表面Ni元素。可以看出，经较高剂量的Xe离子辐照后，Ni峰高度有所降低，在345—357道区间内的相对RBS计数随辐照剂量的

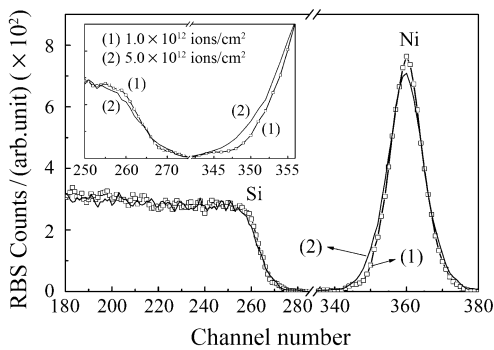


图1 Xe离子辐照Ni/SiO<sub>2</sub>样品的RBS谱

增大而增加，导致Ni峰后沿向低道数方向偏移(约5道，见图1中的插入放大图)，表明样品含Ni层的厚度增加；与此同时，Si前沿由较陡峭变为较平缓，在255—265道区间内的相对RBS计数随辐照剂量的增大而降低，而在265—272道区间内的相对

RBS计数随辐照剂量的增大而增加。这些结果表明，辐照引起了Ni/SiO<sub>2</sub>界面处表层中的Ni原子向衬底SiO<sub>2</sub>中扩散，SiO<sub>2</sub>中Si原子向样品表面Ni层发生了扩散迁移，导致Ni/SiO<sub>2</sub>界面处发生原子混合，并且较高剂量辐照引起了较大量的界面原子扩散混合。

图2 给出了能量为850 MeV的Pb离子和308 MeV的Xe离子分别辐照的Ni/SiO<sub>2</sub>样品RBS谱的对比，辐照剂量分别是5.0 × 10<sup>11</sup> Pb/cm<sup>2</sup>和1.0 × 10<sup>12</sup> Xe/cm<sup>2</sup>。可以看出，相对于Xe离子辐照，样品经Pb离子辐照后，Ni峰后沿在349—359道区间内的相对RBS计数降低，而在330—349道区间内的相对RBS计数增加(见图2中的插入放大图)，表明Ni峰后沿向低道数方向移动，样品中含Ni层的厚度增

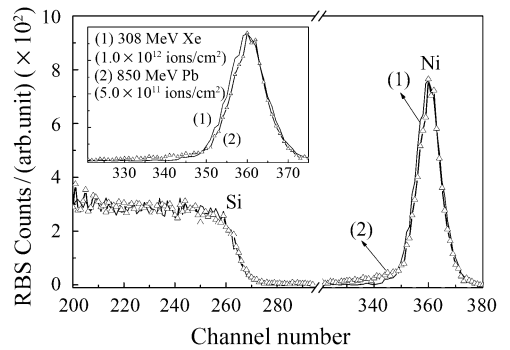


图2 Xe和Pb离子辐照Ni/SiO<sub>2</sub>样品的RBS谱比较

加。这也就是说，虽然Xe离子辐照量高于Pb离子辐照量，但Pb离子辐照导致界面处Ni原子的混合程度仍然大于Xe离子辐照下的混合。考虑到Pb离子在Ni和SiO<sub>2</sub>中的电子能损值均大于Xe离子辐照(见表1)，不难得出这样的结论，在本实验中，除辐照剂量外，强电子激发在Ni/SiO<sub>2</sub>的界面混合过程中非常重要，强的电子激发引起的Ni原子扩散量和深度大，导致Ni与SiO<sub>2</sub>的混合量大。

### 3.2 XRD分析

图 3 给出了Xe离子辐照Ni/SiO<sub>2</sub>样品的X射线衍射谱。可以看到,在未辐照样品中,在43.5°和50.4°附近出现明显的衍射峰,分别对应Ni的(111)和(200)晶面,表明我们制备的Ni薄膜具有<111>晶向择优的多晶结构。辐照剂量为 $1.0 \times 10^{12}$  Xe/cm<sup>2</sup>时,谱中除了金属Ni的衍射峰外,在28.2°和56.3°出现新的衍射峰,分别对应NiSi<sub>2</sub>相的(111)和(311)晶面;当辐照剂量增加到 $5.0 \times 10^{12}$  Xe/cm<sup>2</sup>时,衍射谱中分别在44.5°和42.0°出现了Ni<sub>3</sub>Si(111)和NiO(200)晶面的衍射峰。这些结果表明,高能Xe离子不仅引起了Ni/SiO<sub>2</sub>界面处Ni原子扩散,而且导致了镍硅化合物和镍氧化物的形成。这些新物相的形成与Xe离子辐照剂量密切相关,较低辐照量下易形成NiSi<sub>2</sub>相,较高辐照剂量下则易形成Ni<sub>3</sub>Si和NiO相。随着Xe离子辐照剂量的增加,Ni原子扩散量增加,Ni/SiO<sub>2</sub>界面处Ni原子浓度增大,使得NiSi<sub>2</sub>相向Ni<sub>3</sub>Si相转化。因此,较大剂量离子辐照引起了较大量的Ni原子的迁移,从而导致高镍Ni-Si化合物的形成。

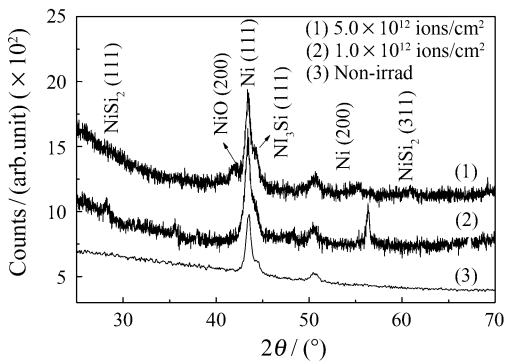
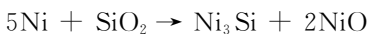
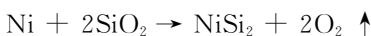


图3 Xe离子辐照Ni/SiO<sub>2</sub>样品的XRD谱

据文献[11]报道,在800 °C下真空退火3 h后,Ni/SiO<sub>2</sub>界面没有明显的原子混合及相变,即Ni与SiO<sub>2</sub>在热平衡状态下不易发生界面原子扩散以及化学反应生成镍的硅化物或氧化物。本实验的RBS和XRD分析结果表明,离子辐照不仅引起了Ni原子的扩散,而且诱发了Ni/SiO<sub>2</sub>界面元素之间的化学反应,导致新结构的形成,其化学反应过程可由以下简单化学反应式表示:



根据热峰模型,快重离子辐照引起不同材料系统界面处的原子扩散主要由电子能损引起的热峰过程的强度决定,也与界面两边材料的性质有关。快重离子辐照在不同材料中引起的热峰过程在界面处可相互影响,导致近界面材料对电子能损的响应与一般块体材料的不同<sup>[12]</sup>。对于Ni/SiO<sub>2</sub>样品,Ni对电子能损不敏感,其形成离子潜径迹的电子能损阈值  $S_{\text{et}} > 77$  keV/nm<sup>[13]</sup>,而SiO<sub>2</sub>中  $S_{\text{et}} \approx 1.6$  keV/nm<sup>[14]</sup>。根据文献[12]中理论分析可以推知,界面处原子扩散量随离子辐照剂量、离子潜径迹尺寸和热峰持续时间的增加而增大。对于Xe离子辐照,较大剂量辐照产生较大量的Ni原子扩散,导致了高镍Ni-Si化合物的形成。与Xe离子辐照相比,Pb离子辐照在Ni/SiO<sub>2</sub>界面处产生的潜径迹尺寸大,沿离子路径的径向高温区大,故Ni原子扩散量大,反应产额多。

## 4 结论

用308 MeV的Xe离子和853 MeV的Pb离子辐照,实验研究了快重离子辐照引起的Ni/SiO<sub>2</sub>界面扩散与相变现象。结果表明,高能Xe和Pb离子辐照均可引起Ni/SiO<sub>2</sub>样品界面处的原子混合,并导致界面处原子发生化学反应而形成新相NiSi<sub>2</sub>或Ni<sub>3</sub>Si。Ni/SiO<sub>2</sub>界面处Ni原子扩散量随辐照剂量和电子能损值的增大而增大,辐照引起的较大量的Ni原子扩散会引起高镍Ni-Si化合物相的形成。根据热峰模型,Ni原子的扩散和新相的形成可能由沿离子入射路径强电子激发引起的瞬间热峰过程驱动。

致谢 感谢中国科学院近代物理研究所SFC工作人员、法国CIRIL有关工作人员以及北京大学重离子物理研究所马宏骥老师等在Xe离子辐照、Pb离子辐照和RBS实验中给予的大力支持帮助。RBS分析得到了北京大学核物理与核技术国家重点实验室开放基金的支持。

### 参考文献 (References):

- [1] Lee D H, Hart R R, Kiewit D A, *et al.* Phys Stat Sol, 1973, 15a: 645.
- [2] Battaglin G, Russo S Lo, Paccagnella A, *et al.* Nucl Instr and Meth, 1987, B27: 402.
- [3] Li J, Liu B X. Nucl Instr and Meth, 1988, B31: 407.

- [4] Romana L, Thevenard P, Brenier R, *et al.* Nucl Instr and Meth, 1988, B32: 96.
- [5] Bouanani M El, Chevarier A, Chevarier N, *et al.* Nucl Instr and Meth, 1990, B50: 431.
- [6] Abonneau E, Perez A, Fuchs G, *et al.* Nucl Instr and Meth, 1991, B59—60: 1 183.
- [7] Kim K S, Choi I S, Lee Y S, *et al.* Nucl Instr and Meth, 1993, B80—81: 1 300.
- [8] Nakatani R, Taniguchi R, Chimi Y, *et al.* Nucl Instr and Meth, 2005, B230: 234.
- [9] Berky W, Balogh A G, Elliman R G. Nucl Instr and Meth, 2004, B226: 309.
- [10] Ziegler J F. Nucl Instr and Meth, 2004, B219—20: 1 027.
- [11] Pretorius R, Harris J M, Nicolet M A. Solid-State Electronics, 1978, 21: 667.
- [12] Wang Z G, Dufour C, Euphrasie S, *et al.* Nucl Instr and Meth, 2003, B209: 194.
- [13] Wang Z G, Dufour Ch, Paumier E, *et al.* J Phys: Condens Matter, 1994, 6: 6 733.
- [14] Meftah A, Brisard F, Costantini J M, *et al.* Phy Rev, 1993, B48: 920.

## Investigation of Intermixing and Phase Change of Ni/SiO<sub>2</sub> under Swift Heavy Ion Irradiation<sup>\*</sup>

LIU Chun-bao<sup>1,3</sup>, WANG Zhi-guang<sup>1, #</sup>, WEI Kong-fang<sup>1,3</sup>, ZANG Hang<sup>1,3</sup>, YAO Cun-feng<sup>1</sup>, MA Yi-zhun<sup>1</sup>, SHENG Yan-bin<sup>1</sup>, GOU Jie<sup>1</sup>, JIN Yun-fan<sup>1</sup>, A. Benyagoub<sup>2</sup>, M. Toulemonde<sup>2</sup>

(1 *Institute of Modern Physics, Chinese Academy of Sciences, Lanzhou 730000, China;*

2 *CIRIL, BP5133, 14070 Caen Cedex 05, France;*

3 *Graduated School of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China*)

**Abstract:** Ni/SiO<sub>2</sub> interface were irradiated at room temperature with 308 MeV Xe ions to  $1 \times 10^{12}$ ,  $5 \times 10^{12}$  Xe/cm<sup>2</sup> and 853 MeV Pb ions to  $5 \times 10^{11}$  Pb/cm<sup>2</sup>, respectively. These samples were analyzed using Rutherford Backscattering Spectrometry (RBS) and X-ray diffraction spectroscopy (XRD), from which the intermixing and phase change were investigated. The obtained results show that both Xe- and Pb-ions could induce diffusion of Ni atoms to SiO<sub>2</sub> substrates and result in intermixing of Ni with SiO<sub>2</sub>. Furthermore,  $1.0 \times 10^{12}$  Xe/cm<sup>2</sup> irradiation induced the formation of NiSi<sub>2</sub> and  $5.0 \times 10^{12}$  Xe/cm<sup>2</sup> irradiation created Ni<sub>3</sub>Si and NiO phases. The diffusion of Ni atoms and the formation of new phase may be driven by a transient thermal spike process induced by the intense electronic energy loss along the incident ion path.

**Key words:** swift heavy ion irradiation; intermixing and phase change; RBS; XRD

\* **Received date:** 28 Jan. 2008; **Revised date:** 27 Mar. 2008

\* **Foundation item:** National Natural Science Foundation of China (10125522, 10475102); Western Light Co-scholar Program of Chinese Academy of Sciences(O605110XL0)

# **Corresponding author:** Wang Zhi-guang, E-mail: zhgwang@impcas.ac.cn