

## Etude par GISAXS et GIXRD des premiers stades de croissance de Cu sur Si(001)-H

B.Gilles , A. Meunier

La croissance des films de cuivre sur silicium a fait l'objet de nombreuses études dans les années 80 en vue de réaliser des contacts électriques Cu sur les dispositifs semi-conducteurs Si. La très forte réactivité chimique du système Cu-Si et la difficulté d'établir des barrières de diffusion efficaces ont conduit rapidement l'industrie de la micro-électronique à l'abandon des contacts Cu au profit de contacts Al à barrières TiN. Par ailleurs, dans le domaine des couches minces et des multicouches métalliques magnétiques, qui s'est considérablement développé depuis le début des années 90, les substrats de Si ont été très peu utilisés pour l'épitaxie par jets moléculaires (EJM) en regard d'autres substrats comme GaAs, Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, MgO, Quartz... En effet, la **différence des paramètres de maille** entre Si et la plupart des métaux couramment utilisés pour leurs propriétés magnétiques (Fe, Co, Ni...) ou comme couches tampons (Pt, Ag, Au, Cr...) et la **forte réactivité à l'interface** conduisent souvent à des croissance polycristallines et à la formation de siliciures métalliques. **Seule la croissance de Cu sur silicium hydrogéné Si(001)-H montre des résultats satisfaisants [1]**. Paradoxalement, les premiers stades de croissance épitaxiale de la couche tampon de Cu ont été peu étudiés. Un siliciure interfacial a été observé mais l'identification du composé n'a pas pu être effectuée de façon certaine, même si la phase  $\eta$ -Cu<sub>3</sub>Si est généralement avancée dans la littérature [2].

Le CNRS-LTPCM, en collaboration avec le CEA-SP2M, est engagé depuis peu dans un programme d'étude des conditions d'épitaxie EJM de métaux sur Si(001), en vue de développer des croissances de systèmes magnétiques à anisotropie perpendiculaire sur Si (multicouches Ni/Cu, alliages ordonnés FePd ou FePt...). Les travaux réalisés dans le cadre de la thèse d'Anthony Meunier, montrent notamment que la formation d'un siliciure de cuivre ou de fer (FeSi<sub>2</sub>) permet la reprise d'épitaxie d'**alliages ordonnés à anisotropie magnétique perpendiculaire (FePd)** avec des propriétés égalant celles obtenues sur MgO. **Cu/Si-H est un système modèle** pour comprendre le rôle du siliciure dans l'adaptation épitaxiale. L'enjeu à long terme concerne aussi bien certains développements de la spintronique, pour lesquels le silicium reste le matériau semi-conducteur incontournable (pôle Grenoblois MINATEC), que l'épitaxie des métaux sur des substrats nano-structurés où là encore les techniques de lithographie sur Si ont atteint des résultats remarquables (plate-forme LETI-PLATO).

Nos premiers résultats en diffraction *in situ* RHEED, montrent qu'il y a **épitaxie d'un film quasi continu de siliciure** lors du dépôt à température ambiante des premières couches atomiques de Cu. En effet, une figure de diffraction entre celle du silicium et celle du cuivre pur apparaît au premier stade de la croissance (figure 1). Une analyse par spectrométrie Auger des dépôts de cuivre confirme la présence d'un siliciure de **composition proche de Cu<sub>3</sub>Si** sur environ 2 nm. La figure 2 montre les profils de concentration en Cu, Si, et Cu<sub>3</sub>Si obtenus à partir de l'analyse des spectres Auger mesurés sur un coin d'épaisseur 0 à 5 nm de cuivre déposé sur Si. Si la structure  $\eta$ -Cu<sub>3</sub>Si [3] semble être compatible avec nos observations, d'autres moyens de caractérisation nous sont nécessaires : Microscopie électronique en Transmission (en cours) et diffraction X *in situ*. Le film de siliciure permet ensuite l'**épitaxie du cuivre**. L'étude *in situ* par STM de la morphologie du dépôt révèle un **arrangement en îlots** présentant une **faible dispersion de tailles** (figure 3). Notre étude préliminaire par TEM a révélé la présence d'une structure en grains colonnaires très faiblement désorientés dont la taille semble coïncider avec la dimension des îlots imaged en STM. Ces îlots coalescent rapidement lors de la croissance de façon à former un film quasi-continu. Il est alors remarquable que cette morphologie présentant une distance de séparation entre îlots bien définie se conserve au cours de la croissance. Cet arrangement régulier d'îlots lors de la croissance d'un film continu ne correspond pas à une morphologie de croissance de type self affine prédite par la plupart des modèles cinétiques.

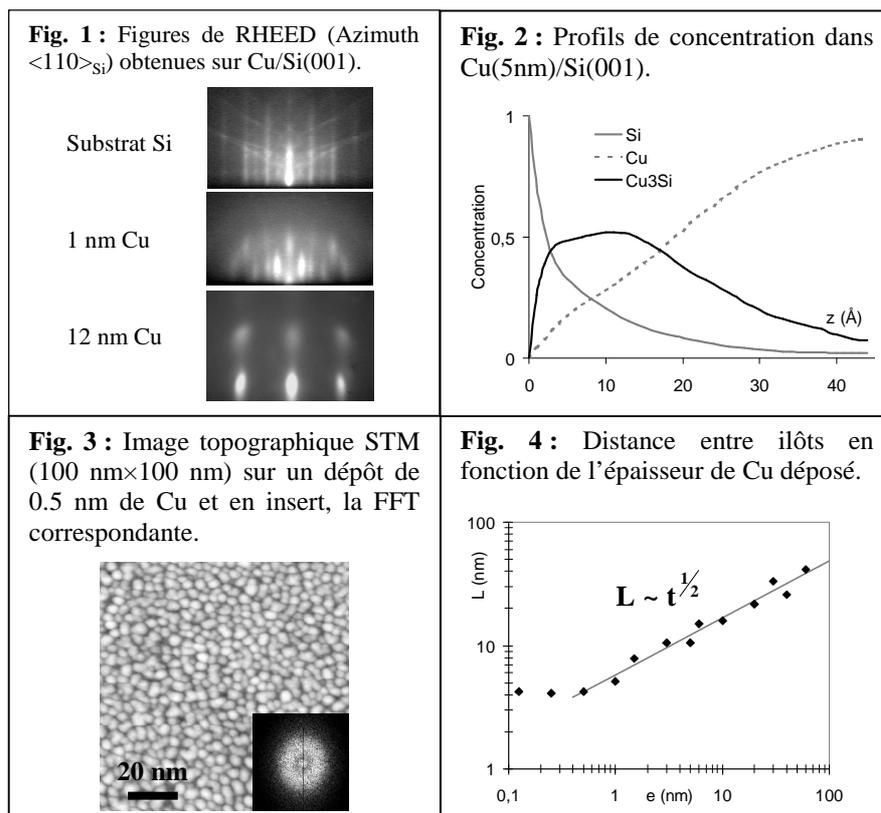
La distance moyenne  $L$  entre îlots déduite des fonctions d'auto-corrélation des hauteurs varie avec l'épaisseur  $t$  de cuivre déposé comme  $L(t) \sim t^{1/2}$  (figure 4). Cette loi d'évolution en puissance a déjà été observée et interprétée pour des valeurs différentes d'exposants (de 0.16 à 0.37) [4]. Dans notre cas, la croissance semble liée à un mécanisme de recristallisation des sous-joints de grains, contrôlée par l'épaisseur du film.

Nous proposons donc d'effectuer une étude plus approfondie de la morphologie du dépôt et de sa structure par une mesure couplée de GIXRD et de GISAXS. Plus précisément :

- 1) En **GIXRD** : Nous rechercherons et indexerons les taches de diffraction du siliciure pour identifier sa phase cristallographique ( $\eta$ -Cu<sub>3</sub>Si ?). On déterminera la relation d'épitaxie entre le silicium, le siliciure et le cuivre ainsi que la déformation épitaxiale. On mesurera la longueur de cohérence latérale (taille des grains colonnaires).
- 2) En **GISAXS** : Nous suivrons l'évolution de la distance moyenne entre îlots, de leur taille et forme, au cours de la croissance. On pourra suivre notamment les premiers stades de nucléation que l'on n'a pas pu observer au STM par manque de résolution. Ces résultats pourront alors être confrontés à un essai de modélisation de croissance.

Il est important dans cette expérience de coupler les deux techniques, afin de vérifier dans le cadre de notre modèle que la topographie est directement reliée à la structure de grains sous-jacents.

Cette proposition d'expérience s'inscrit dans le cadre de la thèse en cours de A. Meunier et qui doit se terminer en octobre 2004.



[1] T. Mewes, M. Rickart, S.O. Demokritov, J. Fassbender, B. Hillebrands and M. Scheib, Surf. Sci. 481 (2001) 87-96.  
 [2] B.G. Demczyk, R. Naik, G. Auner, C. Kota and U. Rao, J. Appl. Phys 75 (4) (1994) 1956-1961 ; Z.H. Zhang, S. Hasegawa, S. Ino, Surf. Sci. 415 (1998) 363-375 ;  
 [3] M.Elkajbaji, J. Dessus and J. Thibault, Phil. Mag. A (1992), 66(6),873-888.  
 [4] Joseph A. Stroscio, L.M. Sander, D.T. Pierce, M.D. Stiles, and A. Zangwill, Phys. Rev. Lett. 75 (1995) 4246-4249.  
 R. Arief Budiman and Harry E. Ruda, Phys. Rev. B, 65 (2002) 045315.