

УДК 537.632

ХАРАКТЕРИЗАЦИЯ СТРУКТУРНЫХ СВОЙСТВ НАНОКЛАСТЕРОВ СИЛИЦИДА ЖЕЛЕЗА В ГЕТЕРОСИСТЕМАХ Si/FeSi МЕТОДОМ МАГНИТОЭЛЛИПСОМЕТРИИ© 2010 Н.Н. Косырев^{1*}, В.Н. Заблуда¹, С.Н. Варнаков¹, В.А. Швец^{2*}, С.В. Рыхлицкий²,
Е.В. Спесивцев², В.Ю. Прокопьев²¹Учреждение Российской академии наук Институт физики им. Л.В. Киренского СО РАН, Красноярск²Учреждение Российской академии наук Институт физики полупроводников им. А.В. Ржанова, Новосибирск

Статья поступила 5 ноября 2009 г.

С доработки — 3 марта 2010 г.

Исследованы начальные стадии роста пленок железа на монокристаллическом кремнии с помощью комбинированного метода магнитоэллипсометрии. Показано, что при толщине $d < 1,2$ нм на поверхности кремния происходит рост нанокластеров силицида железа в немагнитной фазе.

Ключевые слова: эллипсометрия, магнитооптический эффект Керра, молекулярно-лучевая эпитаксия.

ВВЕДЕНИЕ

Знание фундаментальных основ структурных и физико-химических процессов при синтезе новых материалов является ключевым моментом для контролируемого получения высокосоввершенных модулированных структур и систем пониженной размерности. Для наиболее широко используемого в настоящее время полупроводника — кремния — большая часть работ в этом направлении связана с изучением встраивания квантовых точек германия в процессе эпитаксиального роста. В последние годы также появились работы, посвященные изучению встраивания нанокристаллов в кремниевую кристаллическую матрицу [1, 2].

Полупроводниковые силициды металлов, встроенные в кремний, представляют значительный интерес с точки зрения появления новых электронных свойств, что обусловлено большим диапазоном ширины запрещенной зоны силицидов (от 0,07 до 2,5 эВ) и наличием значительной величины термоЭДС. Например, на основе слоев полупроводникового дисилицида железа, встроенных в кремний, созданы светодиоды с длиной волны излучения около 1,55 мкм [3]. Данная длина волны наиболее интересна для передачи оптических сигналов в кремнии. Значительный интерес представляет создание квантово-размерных кристаллитов полупроводникового дисилицида железа (β -FeSi₂) в кремнии. При этом можно ожидать увеличения интенсивности излучения за счет изменения структуры зон в напряженных нанокристаллах с квантованием энергетических уровней.

При получении сложных наноструктур в условиях сверхвысокого вакуума актуальна проблема контроля их свойств непосредственно в процессе изготовления — исследование таких структур *ex situ* на воздухе зачастую невозможно в связи с высокой химической активностью многих материалов, используемых в данной области. Эллипсометрия давно используется как метод исследования структуры и оптических свойств материалов, в том числе для *in situ* диагностики наноструктур.

* E-mail: kosyrev@inbox.ru, shvets@isp.nsc.ru

В предлагаемой работе для идентификации и исследования структурных свойств нанокластеров силицида железа, самоорганизующихся на поверхности кремния, на начальных этапах роста пленок Fe/Si был применен комбинированный метод магнитной эллипсометрии.

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ ЧАСТЬ И МЕТОДИКА ИССЛЕДОВАНИЯ

Образцы получены термическим испарением в модернизированной установке молекулярно-лучевой эпитаксии Ангара [4]. Использовали подложки из стекла и монокристаллов Si(111) при комнатной температуре. Базовый вакуум составлял 10^{-6} Па. Измерения проводили лазерным эллипсометром ЛЭФ-757 [5], оптимизированным для измерения не только традиционных эллипсометрических параметров ψ и Δ , но и магнитооптического отклика системы. Магнитоэллипсометр был интегрирован в сверхвысоковакуумную камеру установки молекулярно-лучевой эпитаксии, что позволило непосредственно в процессе роста контролировать оптические и магнитные свойства тонких пленок. Таким образом, магнитоэллипсометр может работать в двух режимах — эллипсометрическом и магнитооптическом.

Эллипсометрический режим. В этом случае измеряют изменение состояния поляризации света после его отражения от поверхности образца, которое определяют отношением комплексных коэффициентов отражения (коэффициентов Френеля) для p (параллельной) и s (перпендикулярной к плоскости падения) поляризаций света:

$$\rho = \frac{r_p}{r_s} = \operatorname{tg}\psi \exp(i\Delta), \quad (1)$$

где ψ и Δ — экспериментально измеренные параметры. Зная последние можно найти оптические постоянные исследуемой поверхностной структуры, толщину выращиваемой пленки, скорость роста и другие параметры, от которых явным образом зависят коэффициенты отражения.

Магнитооптический режим. Здесь в качестве инструмента исследования магнитного состояния пленок используют поверхностный магнитооптический эффект Керра (surface magneto-optic Kerr effect — SMOKE). В данном случае измеряют поворот плоскости поляризации отраженного света при приложении к образцу магнитного поля.

В нашем эксперименте магнитное поле, создаваемое с помощью вращающегося постоянного магнита, равномерно изменяется в плоскости образца, а сигнал с эллипсометра записывается в виде функции угловой координаты направления магнитного поля по отношению к произвольному направлению в плоскости образца.

Предварительный анализ эллипсометрических данных, полученных *in situ* на начальных стадиях роста пленок Fe, показал, что модель однослойной системы [6], обычно применяемая в таких случаях, не работает. Мы исследовали начальные этапы роста с использованием модели нанокластеров в виде полусферических капелек — зародышей [7] (рис. 1, а). Рассмотрим эту модель подробнее. Введем некоторые обозначения: n — плотность капелек; r — радиус капли; d — толщина растущего островкового слоя; V_i — объем отдельной капли; V_l — объем слоя; S — площадь слоя; тогда $V_i = \frac{2}{3}\pi r^3$. Объемная доля вакуума $q = 1 - \frac{V_i n}{V_l}$, и с учетом, что

$r = d$: $q = 1 - \frac{V_i n}{Sd}$. Так как площадь зондируемой области ограничивается площадью светового пятна (будем условно ее считать

равной 1 мкм^2), то $q = 1 - \frac{2}{3}\pi n r^2$.

После превышения критического радиуса начинается слияние капелек. Представим исследуемую площадь в виде сетки с количеством ячеек, равным n (см. рис. 1, б). Критический радиус r_c

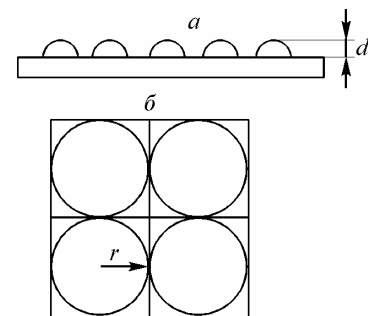


Рис. 1. Представление нанокластеров в виде полусферических капелек

будет равен радиусу окружности, вписанной в одну такую ячейку: $r_c = \frac{1}{2\sqrt{n}}$. Соответственно,

критическая доля вакуума равна $q_c = 1 - \frac{2}{3}\pi nr_c^2 = 1 - \frac{\pi}{6} \approx 0,48$.

Имеем

$$q = 1 - \frac{2}{3}\pi nr^2 \quad \text{при } r \leq r_c. \quad (2)$$

Опишем q ($r > r_c$) экспонентой вида $q(r) = Ae^{-r/B}$. Коэффициенты A и B можно найти, решая совместно (2) при $r = r_c$ и $\left. \frac{dq}{dr} \right|_{r=r_c}$.

Итак,

$$B = \frac{1 - \frac{\pi}{6}}{\frac{2}{3}\pi\sqrt{n}}, \quad A = \left(1 - \frac{\pi}{6}\right) e^{\frac{2\pi}{6-\pi}}.$$

Следовательно,

$$\begin{cases} q = 1 - \frac{2}{3}\pi nr^2, & r \leq r_c; \\ q = Ae^{-r/B}, & r > r_c. \end{cases} \quad (3)$$

Если известна объемная доля вакуума, используя модель эффективной среды Бругемана [7], можно рассчитать эффективный комплексный показатель преломления $N_{\text{эф}}$, определяемый соотношением

$$q \frac{N_f^2 - N_{\text{эф}}^2}{N_f^2 + 2N_{\text{эф}}^2} + (1-q) \frac{N_a^2 - N_{\text{эф}}^2}{N_a^2 + 2N_{\text{эф}}^2} = 0, \quad (4)$$

где N_f и N_a — показатели преломления материала пленки и окружающей среды; q — относительный объем, занимаемый сферическими частицами в островковой пленке. Так как в нашем случае окружающей средой является вакуум, то $N_a = 1$, и уравнение (9) сводится к квадратному уравнению относительно $N_{\text{эф}}^2$:

$$2N_{\text{эф}}^4 - (3qN_f^2 - N_f^2 - 3q + 2)N_{\text{эф}}^2 + 2 = 0. \quad (5)$$

РЕЗУЛЬТАТЫ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

Экспериментальные точки ψ и Δ , полученные при начальных стадиях роста Fe на Si, достаточно хорошо описываются выражением (5) (рис. 2). Была использована модель полусферических нанокластеров дисилицида железа со значением $r_c = 1,15$ нм. Таким образом, вырос слой толщиной $d = 1,15$ нм, состоящий из нанокластеров. Образование силицида на границе раздела и толщина переходного слоя дополнительно подтверждены анализом магнитооптического отклика.

На рис. 3 показана величина сигнала SMOKE для пленок Fe с толщиной 0,5 и 1,5 нм

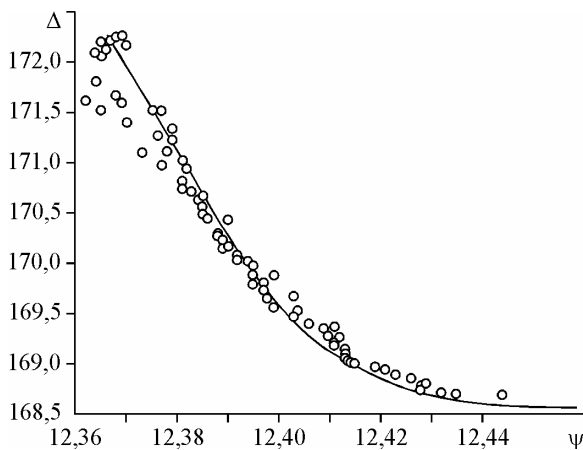


Рис. 2. Эллипсометрические данные, полученные *in situ* на начальных этапах роста Fe

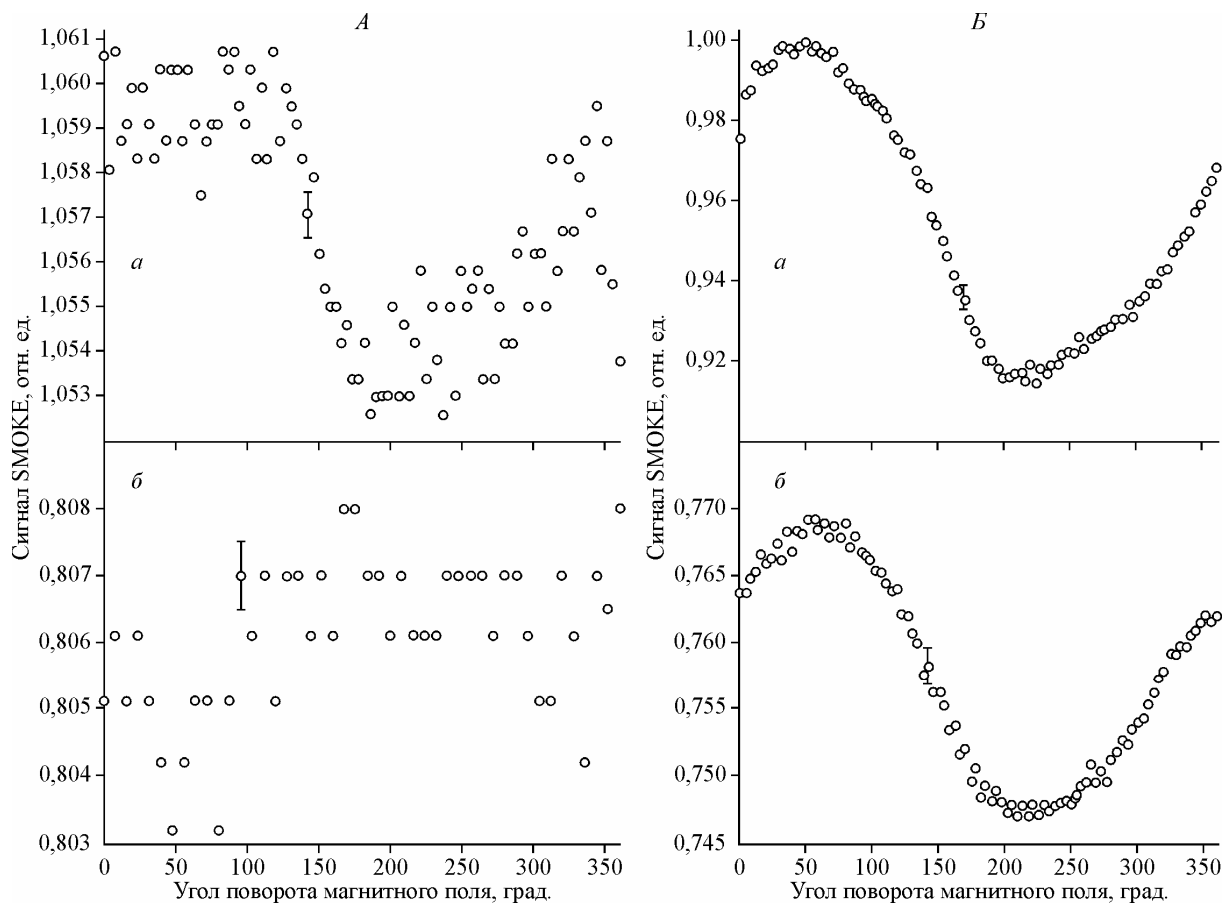


Рис. 3. Зависимость величины сигнала SMOKE от направления магнитного поля для пленок Fe толщиной 0,5 нм (А) и 1,5 нм (Б) на подложках из стекла (а) и кремния (б)

соответственно. Для толщины $d = 1,5$ нм сигнал почти одинаков для подложек из стекла и монокристаллического кремния, в то время как для $d = 0,5$ нм пленка на стекле уверенно показывает наличие ферромагнитного порядка при $T = 300$ К (см. рис. 3, а), а пленка на Si характеризуется более размытым сигналом (см. рис. 3, б). Следует отметить, что пленки на стекле и кремнии изготавливали одновременно, так как в ростовую камеру загружали две подложки. Таким образом, можно исключить флуктуацию технологических условий при изготовлении пленок. Мы связываем различие экспериментальных данных с образованием силицидов железа для подложки Si в смеси фаз, среди которых есть и магнитная фаза Fe_3Si и немагнитные FeSi и FeSi_2 , в то время как в случае подложки стекла мы имеем резкую границу раздела Fe—стекло. В принципе, конечно, возможно образование соединений железа и окислов кремния, входящих в состав стеклянной подложки, однако это требует высокой температуры подложки и не происходит при напылении при комнатной температуре. Поэтому для тонкой пленки 0,5 нм Fe/Si практически весь слой состоит из силицидов, что и дает уменьшение сигнала, а для подложки из стекла пленка толщиной 0,5 нм содержит два атомных слоя Fe и показывает магнитное упорядочение. В то же время для толщины $d = 1,5$ нм сигналы похожи по форме, но различны по амплитуде, что говорит о том, что для Fe/Si только часть пленки Fe образует силициды железа на границе раздела с подложкой. Известно, что на малых толщинах величина магнитооптического эффекта Керра пропорциональна толщине пленки [8]. Сравнивая амплитуды сигналов в случаях а и б на рис. 3, Б, мы имеем возможность оценить толщину δ интерфейса границы раздела Fe/Si. Наша оценка $\delta \approx 1,1$ нм согласуется с оценкой толщины интерфейса, полученной измерениями намагниченности *ex situ* для многослойных структур $(\text{Fe/Si})_n$ [9].

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В результате анализа магнитооптического отклика было установлено, что на поверхности кремния образуется силицид железа в немагнитной фазе, а при решении обратной задачи эллипсометрии для измеренного массива эллипсометрических параметров ψ и Δ были идентифицированы нанокластеры и предложена их геометрия в виде полусферических капелек.

Работа выполнена при поддержке программы 4.1 ОФН РАН "Спинтроника", программы Президиума РАН 27.10, интеграционного проекта СО РАН и ДВО РАН 22, а также Федеральной целевой программы "Научные и научно-педагогические кадры инновационной России на 2009—2013 годы" (Государственный контракт П1464 и П1185).

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Saranin A.A., Zotov A.V., Kuyanov I.A. et al. // Phys. Rev. B. – 2005. – 71. – P. 165307.*
2. *Jia J., Wang J.Z., Liu X. et al. // Appl. Phys. Lett. – 2002. – 80. – P. 3186.*
3. *Li C., Suemasu T., Hasegawa F. // J. Appl. Phys. – 2005. – 97. – P. 043529.*
4. *Варнаков С.Н., Лепешев А.А., Овчинников С.Г. и др. // ПТЭ. – 2004. – 6. – С. 252.*
5. *Швец В.А., Снесивцев Е.В., Рыхлицкий С.В. // Оптика и спектроскоп. – 2004. – 97. – С. 514.*
6. *Fujiwara H. Spectroscopic ellipsometry: principles and applications. – Wiley, 2007.*
7. *Aspnes D.E., Theeten J.B., Hottier F. // Phys. Rev. B. – 1979. – 20, N 8. – P. 3292.*
8. *Choi B.-Ch., Folsch S., Farle M., Rieder K.-H. // Phys. Rev. B. – 1997. – 56, № 6. – P. 3271.*
9. *Варнаков С.Н., Паршин А.С., Овчинников С.Г. и др. // Письма в ЖТФ. – 2005. – 31. – С. 1.*