

12,05,13

## Формирование сверхтонких магнитных пленок железа на вицинальной поверхности кремния

© М.В. Гомоюнова<sup>1</sup>, Г.С. Гребенюк<sup>1</sup>, И.И. Пронин<sup>1</sup>, С.М. Соловьев<sup>1</sup>,  
Д.Е. Марченко<sup>2</sup>, Д.В. Вялых<sup>3</sup>

<sup>1</sup> Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе РАН,  
Санкт-Петербург, Россия

<sup>2</sup> HZB BESSY,  
Berlin, Germany

<sup>3</sup> Institut für Festkörperphysik, Technische Universität Dresden,  
Dresden, Germany

E-mail: Igor.Pronin@mail.ioffe.ru

(Поступила в Редакцию 5 июля 2010 г.)

Изучены фазовый состав, электронное строение и магнитные свойства сверхтонких слоев железа и силицидов железа, образующихся при нанесении 1–25 Å Fe на атомно-чистую вицинальную поверхность Si(100) при комнатной температуре. Исследование проведено методами фотоэлектронной спектроскопии высокого энергетического разрешения с использованием синхротронного излучения и магнитного линейного дихроизма в фотоэмиссии Fe 3р-электронов. Показано, что последовательность формирования фаз (твердый раствор Fe–Si, силицид Fe<sub>3</sub>Si, пленка железа) такая же, как и в случае нанесения железа на сингулярную грань Si(100), однако в данном случае заметно усилена сегрегация кремния на пленке железа. Установлено, что ферромагнитное упорядочение пленок в плоскости поверхности образца носит пороговый характер и наступает после нанесения 7 Å Fe на стадии роста силицида Fe<sub>3</sub>Si. Дальнейшее напыление приводит к увеличению остаточной намагниченности пленки, достигающей насыщения при дозах напыления около 20 Å. При этом пленка обладает магнитной анизотропией, и ее ось легкого намагничивания ориентирована вдоль ступеней подложки.

Работа выполнена при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (проект № 10-02-00632) и Российско-Германской лаборатории в HZB BESSY.

### 1. Введение

Низкоразмерные системы обладают необычными магнитными свойствами, изучение которых представляет большой научный и практический интерес [1]. Так, например, из-за магнитного дипольного взаимодействия сверхтонкие пленки металлов в зависимости от толщины могут намагничиваться как вдоль, так и перпендикулярно поверхности [2–4]. Оказалось также, что островковые пленки металлов группы железа, образующиеся на поверхности диэлектриков, могут обладать суперпарамагнитными свойствами. При этом переход в ферромагнитную фазу происходит вблизи порога перколяции островков [5,6]. Наконец, исследования наноструктур железа, сформированных на вицинальной (ступенчатой) поверхности немагнитных металлов (W(100) [7], Cu(111) [8], Au(111) [9] и др.), показали, что для них характерна одноосная магнитная анизотропия, индуцированная ступеньками. Причем ось легкого намагничивания может быть ориентирована как параллельно, так и перпендикулярно ступеням подложки.

В отличие от рассмотренных систем магнитные свойства сверхтонких слоев железа, формирующихся на вицинальных поверхностях кремния, изучены в значительно меньшей степени, а имеющиеся работы выполнены преимущественно для больших покрытий, эффектив-

ная толщина которых составляет несколько нанометров Fe [10,11]. Особенностью системы Fe/Si является сильное химическое взаимодействие между атомами железа и кремния в области интерфейса, которое может приводить к формированию как стабильных, так и метастабильных фаз силицидов железа [12]. Образование этих фаз очень чувствительно к кристаллическому строению подложки, ее дефектам, а также к условиям проведения эксперимента. Поэтому изучение магнитных свойств сверхтонких слоев железа на кремнии необходимо сопровождать одновременным анализом их элементного и фазового состава. Такой подход уже был использован нами для исследования пленок, формирующихся на сингулярных (атомно-гладких) поверхностях Si(100) 2 × 1 и Si(111) 7 × 7 [13,14]. Применение его к наноструктурам железа, самоорганизующимся на вицинальной поверхности кремния Si(111), показало, что ступенчатость вицинальной поверхности может оказывать очень существенное влияние на магнитные свойства формирующихся покрытий [15].

В настоящей работе описываются результаты исследования, проведенного на другой вицинальной поверхности кремния — Si(100). Целью работы было установление взаимосвязи электронного строения, фазового состава и магнитных свойств пленок железа на ранних стадиях их роста.

## 2. Техника эксперимента

Основные эксперименты проводились в Российско-Германской лаборатории на синхротроне HZB BESSY. Исследуемые образцы изготавливались из пластин монокристаллического кремния КЭФ-1, поверхность которых имела отклонение от базовой плоскости (100), равное  $4^\circ$ . Очистка поверхности образцов проводилась стандартным способом — обработкой *ex situ* по методу Шираки с последующим отжигом в сверхвысоком вакууме [15]. При этом после длительного обезгаживания при  $600^\circ\text{C}$  они сначала нагревались до температуры  $1200^\circ\text{C}$ , затем быстро охлаждались до  $900^\circ\text{C}$ , а далее медленно остывали (со скоростью менее градуса в секунду) до комнатной температуры. Такая процедура обеспечивала получение атомно-чистой поверхности, представлявшей собой систему регулярных террас  $\text{Si}(100)2 \times 1$  шириной около  $10\text{ nm}$ , разделенных эшелонами ступеней. Атомная структура поверхности контролировалась методом дифракции медленных электронов. Для проведения контрольных экспериментов применялись также подложки с сингулярной поверхностью  $\text{Si}(100)2 \times 1$ , разориентация которых относительно плоскости (100) не превышала  $0.1^\circ$ . Железо на поверхность образцов наносилось после их остывания до комнатной температуры. Скорость напыления составляла  $\sim 0.3 \text{ \AA}/\text{min}$ . Эффективная толщина пленок железа варьировалась в диапазоне  $1\text{--}25 \text{ \AA}$ .

Основным методом анализа электронного строения поверхностных слоев являлась фотоэлектронная спектроскопия высокого энергетического разрешения с использованием синхротронного излучения. Энергия фотонов, как правило, составляла  $135\text{ eV}$ , а энергетическое разрешение спектрометра (с учетом монохроматора) —  $100\text{ meV}$ . Фазовый состав формирующихся пленок определялся на основе анализа спектров валентных и остовных  $\text{Si } 2p$ -электронов, обладающих высокой чувствительностью к химическому состоянию атомов кремния и их локальному окружению.

Изучение магнитных свойств пленок проводилось с помощью поверхностно-чувствительного метода магнитного линейного дихроизма в фотоэмиссии  $\text{Fe } 3p$ -электронов [16–19]. Эффект состоит в том, что при регистрации электронов в узком телесном угле вдоль нормали к поверхности образца энергетическое положение и форма  $\text{Fe } 3p$ -линии оказываются зависящими от направления намагниченности пленки железа в плоскости поверхности. Для намагничивания образцов мы использовали пару катушек Гельмгольца, помещенных внутри вакуумной камеры. Пропусканием через них импульсов тока создавалось магнитное поле напряженностью  $10^3\text{ Oe}$ , достаточное для насыщения намагниченности образцов. Для получения сведений о возможной магнитной анизотропии сверхтонких пленок железа, стимулированной ступенями подложки, были проведены две идентичные серии экспериментов с одинаковыми образцами, по-разному ориентированными в магнитном

поле. В первой из них образцы намагничивались вдоль ступеней подложки (в направлении  $\langle 110 \rangle$ ), а в другой — в том же кристаллографическом направлении, что перпендикулярно ступеням. В каждом из опытов спектры  $\text{Fe } 3p$ -электронов измерялись в режиме остаточной намагниченности для двух противоположных ориентаций магнитного поля. Эксперименты проводились при комнатной температуре в вакууме  $10^{-10}\text{ mbar}$ .

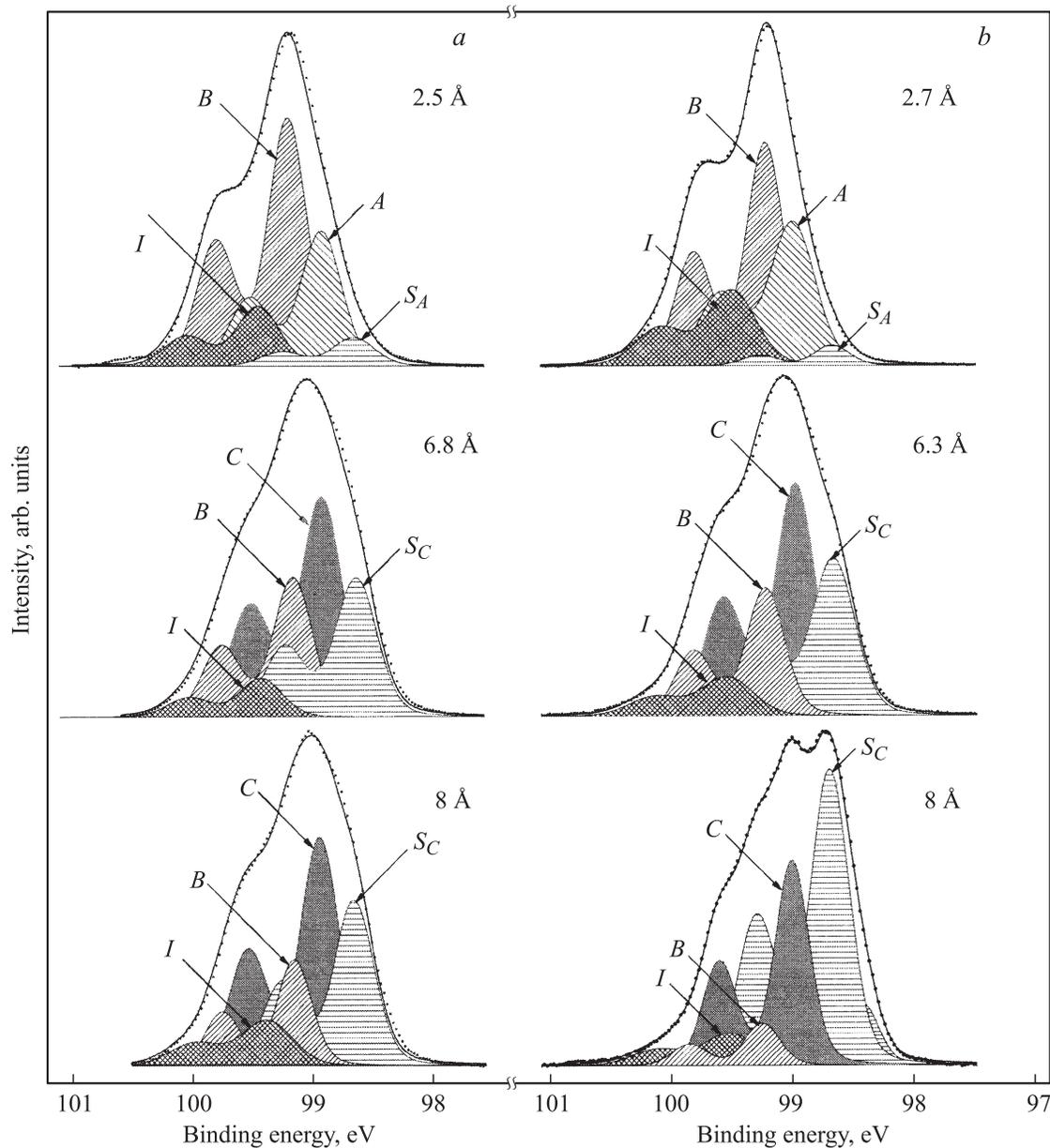
## 3. Результаты и их обсуждение

Типичные спектры  $\text{Si } 2p$ -электронов, измеренные для различных доз напыления железа на вицинальную поверхность  $\text{Si}(100)$ , показаны на рис. 1, *b* точками. Для наглядности представления спектры приведены без фона и нормированы на максимумы интенсивности. На рис. 1, *a* с целью выявления роли ступеней подложки в формировании пленок железа представлены аналогичные данные для сингулярной поверхности  $\text{Si}(100)2 \times 1$ , ширина террас на которой была на порядок больше, чем для вицинальной грани. Однако, как видно из рис. 1, на ранней стадии роста пленки железа (до  $\sim 7 \text{ \AA}$ ) этот фактор не оказывает заметного влияния на динамику изменения спектров с покрытием. Отсюда можно сделать вывод о том, что начальные стадии формирования интерфейса  $\text{Fe}/\text{Si}$  протекают сходным образом на обеих подложках.

Рис. 1 демонстрирует также результаты разложения измеренных спектров на составляющие, которые были получены с помощью стандартной процедуры, основанной на использовании функций Фойгта [20]. Разные моды спектров по-разному заштрихованы. Видно, что основной вклад в спектры, измеренные после нанесения на поверхность кремния  $2.5 \text{ \AA Fe}$ , вносят компоненты *B* и *A*. Они соответствуют атомам кремния, находящимся в кремниевой подложке (мода *B*) и в твердом растворе  $\text{Fe-Si}$  (мода *A*), образуемом на поверхности обоих образцов. Аргументы в пользу такой идентификации мод приведены в работе [12].

Дальнейшее увеличение дозы напыления до  $\sim 6 \text{ \AA Fe}$  приводит к замене моды *A* модой *C*, которая соответствует атомам кремния в силициде железа  $\text{Fe}_3\text{Si}$ . Вывод о трансформации твердого раствора кремния в железе в силицид  $\text{Fe}_3\text{Si}$  подтверждается характерным изменением спектра фотовозбужденных валентных электронов, в которых вблизи уровня Ферми возникает широкий максимум с почти плоской вершиной [12,21].

Следует также отметить, что появление в спектре  $\text{Si } 2p$ -электронов моды *C* сопровождается возникновением еще одной компоненты —  $S_C$ , которая является модой атомов кремния, сегрегированных на поверхности образца [12,13]. Относительная интенсивность этой моды усиливается при дальнейшем напылении  $\text{Fe}$ , когда на слое  $\text{Fe}_3\text{Si}$  начинает расти пленка железа. Причем в случае вицинальной поверхности  $\text{Si}(100)$  при дозе напыления  $8 \text{ \AA Fe}$  эта мода становится доминирующей в  $\text{Si } 2p$ -спектре.

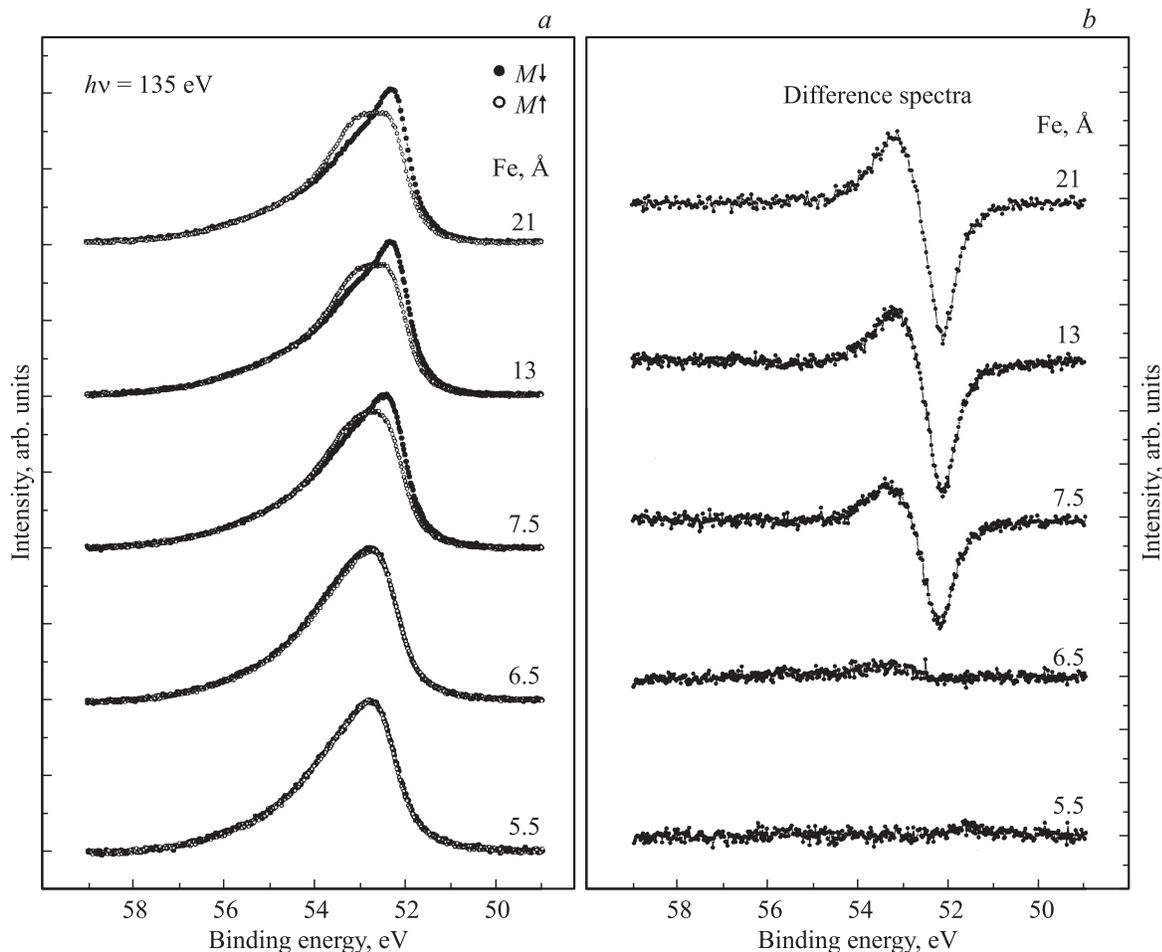


**Рис. 1.** Экспериментальные спектры фотовозбужденных Si  $2p$ -электронов, полученные для различных доз напыления железа на кремний, и результаты разложения спектров на составляющие. *a* — сингулярная поверхность Si(100) $2 \times 1$ , *b* — вициальная поверхность Si(100).

Таким образом, на начальной стадии роста пленок, формирующихся на вициальной и сингулярной поверхностях Si(100), фазовый состав их поверхностных слоев практически одинаков. Образованию пленки чистого железа в обоих случаях предшествует формирование твердого раствора кремния в железе и богатого железом силицида  $\text{Fe}_3\text{Si}$ . Наблюдающиеся различия связаны главным образом с усилением сегрегации кремния на пленке железа, растущей на ступенчатой поверхности вициальной грани.

Обратимся теперь к магнитным свойствам формирующихся пленок. Результаты, полученные для вици-

альной поверхности кремния, иллюстрирует рис. 2. На рис. 2, *a* приведены Fe  $3p$ -спектры, измеренные после нанесения на поверхность образца возрастающих доз железа. Видно, что спектры  $I_{\uparrow}(E)$  и  $I_{\downarrow}(E)$ , зарегистрированные при двух противоположных направлениях намагниченности образца, на ранних стадиях напыления совпадают, так что эффект магнитного линейного дихроизма не наблюдается. Спектры становятся чувствительными к направлению намагниченности образца после нанесения  $7.5 \text{ \AA}$  Fe. Это хорошо видно из сопоставления разностных кривых ( $I_{\uparrow} - I_{\downarrow}$ ), показанных на рис. 2, *b*. Начиная с данного покрытия, на них

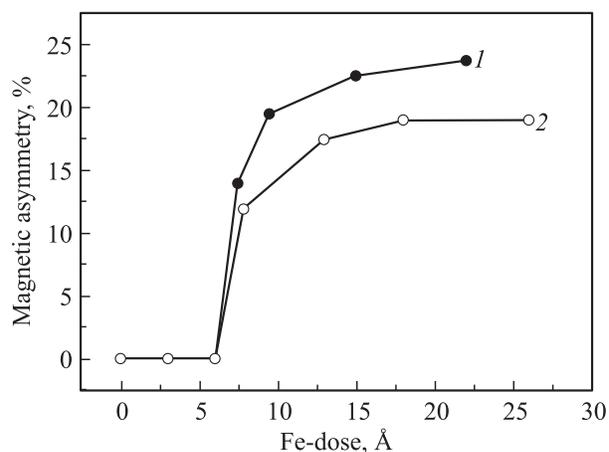


**Рис. 2.** Спектры  $I_{\uparrow}(E)$  и  $I_{\downarrow}(E)$  Fe  $3p$ -электронов, измеренные после намагничивания образца в двух противоположных направлениях ( $M_{\uparrow}$  и  $M_{\downarrow}$ ) в плоскости поверхности (а), и соответствующие им разностные кривые  $I_{\uparrow} - I_{\downarrow}$  (b).

появляются четкие минимумы и максимумы, соответствующие подуровням мультиплета Fe  $3p$  с магнитными квантовыми числами  $m_j = \pm 3/2$ . Количественно эффект магнитного линейного дихроизма характеризуют амплитудой магнитной асимметрии  $A$ , определяемой по формуле:  $A = \{\max[S(E)] - \min[S(E)]\} \cdot 100\%$ , где  $S(E) = (I_{\uparrow} - I_{\downarrow}) / (I_{\uparrow} + I_{\downarrow})$ . Амплитуда магнитной асимметрии является непосредственной мерой остаточной намагниченности образцов [18].

Зависимость амплитуды магнитной асимметрии от эффективной толщины слоя железа, нанесенного на вицинальную поверхность Si(100), иллюстрируется рис. 3. На нем приведены данные, полученные для образцов, намагниченных вдоль ступеней подложки (кривая 1) и перпендикулярно им (кривая 2). Видно, что обе зависимости во многом сходны, и ферромагнитное упорядочение пленок железа носит пороговый характер. Следует подчеркнуть, что аналогичное поведение размерной зависимости величины  $A$  наблюдалось и для сингулярной поверхности Si(100) $2 \times 1$  [13,14]. Учитывая, что использованный нами метод чувствителен лишь к намагниченности пленки вдоль поверхности образца, от-

меченный пороговый характер размерных зависимостей можно объяснить известным эффектом переориентации спина электронов от перпендикулярного поверхности



**Рис. 3.** Зависимости амплитуды магнитной асимметрии от дозы напыления железа, полученные при намагничивании образца вдоль ступеней подложки (1) и перпендикулярно им (2).

направления к параллельному ей, который обусловлен усилением роли магнитных дипольных взаимодействий с увеличением толщины пленки [2–4].

Обращает на себя внимание также заметный рост величины  $A$  в диапазоне покрытий 10–15 Å Fe (за отмеченным выше порогом ферромагнитного упорядочения). Эта закономерность может быть объяснена изменением химического состава растущей пленки. Действительно, если принять во внимание, что регистрируемые Fe  $3p$ -электроны выходят из приповерхностного слоя образца толщиной менее 10 Å, то становится ясным, что в указанном диапазоне покрытий мы переходим от анализа магнитных свойств пленки силицида к анализу пленки железа, растущей на этом силициде. Причем в элементарной ячейке Fe<sub>3</sub>Si для атомов Fe имеется два типа неэквивалентных мест, характеризующихся существенно разными магнитными моментами (1.2 и 2.3  $\mu_B$ ) [22]. Поэтому средний магнитный момент атомов Fe в этом соединении оказывается заметно меньшим, чем у чистого железа, что и объясняет наблюдаемую закономерность.

Из данных, приведенных на рис. 3, также следует, что максимальные значения величины  $A$ , достигаемые для пленок железа при наибольших покрытиях, зависят от ориентации вектора напряженности магнитного поля относительно направления ступеней подложки. При этом намагниченность пленки в направлении вдоль ступеней оказывается примерно на 25% выше, чем в перпендикулярном направлении. Это свидетельствует о том, что пленкам железа, формирующиеся на вицинальной поверхности кремния, свойственна магнитная анизотропия. Эффект, по-видимому, обусловлен специфической морфологией пленок. На ранних стадиях их роста на поверхности кремния могут образовываться квазиодномерные структуры, вытянутые преимущественно вдоль ступеней подложки, что и приводит к появлению оси легкого намагничивания в данном направлении. Формирование сходных структур было недавно обнаружено нами при нанесении тонких слоев железа на вицинальную поверхность Si(111), модифицированную поверхностной фазой  $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ -Ag [15].

#### 4. Заключение

Таким образом, ступенчатость вицинальной поверхности Si(100) не оказывает сильного влияния на фазовый состав формирующегося интерфейса Fe/Si, а проявляется главным образом в усилении сегрегации кремния на поверхности образца. Кроме того, этот фактор влияет на морфологию пленки и приводит к появлению одноосной магнитной анизотропии в плоскости поверхности образца. Ферромагнитное упорядочение растущей пленки носит пороговый характер и наступает после нанесения 7 Å Fe на стадии образования силицида железа Fe<sub>3</sub>Si. Дальнейшее напыление металла приводит к росту на

этом силициде пленки железа, намагниченность которой достигает насыщения при дозах напыления около 20 Å.

#### Список литературы

- [1] C.A.F. Vaz, J.A.C. Bland, G. Lauhoff. Rep. Prog. Phys. **71**, 056 501 (2008).
- [2] C. Liu, S.D. Bader. Phys. Rev. B **41**, 553 (1990).
- [3] Z.Q. Qiu, J. Pearson, S.D. Bader. Phys. Rev. Lett. **70**, 1006 (1993).
- [4] Z.H. Nazir, C.-K. Lo, M. Hardiman. J. Magn. Magn. Mater. **156**, 435 (1996).
- [5] C. Martinez Boubeta, C. Clavero, J.M. Garcia-Martin, G. Armelles, A. Cebollada, L.I. Balcells, J.L. Menendez, F. Piro, M.F. Toney. Phys. Rev. B **71**, 014 407 (2005).
- [6] P. Torelli, S. Benedetti, P. Luches, L. Gragnaniello, J. Fujii, S. Valeri. Phys. Rev. B **79**, 035 408 (2009).
- [7] J. Chen, J.L. Erskine. Phys. Rev. Lett. **68**, 1212 (1992).
- [8] Y. Mo, K. Varga, E. Kaxiras, Z.Y. Zhang. Phys. Rev. Lett. **94**, 155 503 (2005).
- [9] S. Rohart, Y. Girard, Y. Nahas, V. Repain, G. Rodary, A. Tejada, S. Rousset. Surf. Sci. **602**, 28 (2008).
- [10] V. Gougo dos Santos, J. Geshev, J.E. Schmidt. S.R. Teixeira, L.G. Pereira. Phys. Rev. B **61**, 1311 (2000).
- [11] M. Cougo dos Santos, J. Geshev, L.G. Pereira, M.C.M. Alves, J.E. Schmidt. Phys. Rev. B **70**, 104 420 (2004).
- [12] M.V. Gomoyunova, I.I. Pronin, D.E. Malygin, A.S. Voronchihin, D.V. Vyalikh, S.L. Molodtsov. Surf. Sci. **601**, 5069 (2007).
- [13] I.I. Pronin, M.V. Gomoyunova, D.E. Malygin, D.V. Vyalikh, Yu.S. Dedkov, S.L. Molodtsov. J. Appl. Phys. **104**, 104 914 (2008).
- [14] I.I. Pronin, M.V. Gomoyunova, D.E. Malygin, D.V. Vyalikh, Yu.S. Dedkov, S.L. Molodtsov. Appl. Phys. A **94**, 467 (2009).
- [15] М.В. Гомоюнова, И.И. Пронин, С.М. Соловьев, Д.В. Вялых, С.Л. Молодцов. ФТТ **52**, 377 (2010).
- [16] Ch. Roth, F.U. Hillebrecht, H.B. Rose, E. Kisker. Phys. Rev. Lett. **70**, 3479 (1993).
- [17] F. Sirotti, G. Rossi. Phys. Rev. B **49**, 15 682 (1994).
- [18] N. Janke-Gilman, M. Hochstasser, R.F. Willis. Phys. Rev. B **70**, 184 439 (2004).
- [19] И.И. Пронин, М.В. Гомоюнова, Д.Е. Малигин, Д.В. Вялых, Ю.С. Дедков, С.Л. Молодцов. ФТТ **50**, 533 (2008).
- [20] M.V. Gomoyunova, I.I. Pronin, N.R. Gall, S.L. Molodtsov, D.V. Vyalikh. Surf. Sci. **578**, 174 (2005).
- [21] R. Klaesges, C. Carbone, W. Everhardt, C. Pampuch, O. Rader, T. Kachel, M. Gudat. Phys. Rev. B **56**, 10 801 (1997).
- [22] S. Hong, P. Wetzel, G. Gewinner, D. Bolmont, C. Pirri. J. Appl. Phys. **78**, 5404 (1995).