

## Магнитный линейный дихроизм фотоэмиссии из сверхтонкой пленки силицида железа

© И.И. Пронин, М.В. Гомоюнова, Д.Е. Малыгин, Д.В. Вялых\*, Ю.С. Дедков\*, С.Л. Молодцов\*.\*.\*

Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе Российской академии наук,  
194021 Санкт-Петербург, Россия

\* Институт физики твердого тела Дрезденского технического университета,  
01309 Дрезден, Германия

\*\* Научно-исследовательский институт физики им. В.А. Фока Санкт-Петербургского государственного университета,  
198504 Санкт-Петербург, Петергоф, Россия

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

(Поступила в Редакцию 29 июня 2007 г.)

Эффект магнитного линейного дихроизма в фотоэмиссии Fe  $3p$ -электронов использован для изучения магнитных свойств поверхности Si(100) $2 \times 1$ , на которую в условиях сверхвысокого вакуума при комнатной температуре наносились пленки железа толщиной до 10 монослоев. Эксперименты проведены с использованием линейно-поляризованного света с энергией фотонов 135 eV, падавшего под углом  $30^\circ$  к поверхности. Фотоэлектронные спектры измерялись в узком телесном угле, ориентированном вдоль нормали к поверхности образца, для двух противоположных направлений намагниченности образца параллельных плоскости его поверхности и перпендикулярных вектору поляризации световой волны. Анализ всей совокупности полученных данных показал, что эффект носит пороговый характер и возникает после нанесения восьми монослоев Fe, когда на поверхности образуется ферромагнитный силицид Fe<sub>3</sub>Si.

Работа выполнена при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (проект № 07-02-01009) и Российско-Германской лаборатории на BESSY.

PACS: 75.70.Ak, 79.60.Dp

Проблема формирования сверхтонких магнитных слоев на поверхности полупроводников представляет большой научный интерес с точки зрения установления влияния атомного и электронного строения вещества на его магнитные свойства. Выращивание магнитных структур на кремниевых подложках очень важно и для практики, так как интегрирование магнитных устройств в кремниевые микросхемы открывает новые возможности в области хранения и записи информации, а также создания сенсорных датчиков [1].

Одним из главных компонентов магнитных материалов является железо, и проблеме роста пленок этого металла на поверхности монокристаллического кремния уделялось много внимания. Система Fe/Si является довольно сложной, так как из-за активной диффузии контактирующих элементов в ней может возникать целый ряд стабильных и метастабильных фаз силицидов железа [1–12]. Метастабильные силициды, как правило, образуются только в тонких слоях за счет ориентирующего влияния подложки. Этот процесс очень чувствителен к условиям нанесения металла, и поэтому литературные данные, относящиеся к проблеме формирования силицидов железа на поверхности кремния, во многом неоднозначны, особенно в случае роста пленок Fe на поверхности Si (100) $2 \times 1$  [12].

Магнитные свойства сверхтонких пленок железа на кремнии исследовались лишь в нескольких работах, в которых было показано, что при комнатной температуре ферромагнитное упорядочение поверхностных слоев наступает после нанесения нескольких монослоев железа [1,9,13,14]. Эта информация была получена с

помощью магнитооптического эффекта Керра, магнитного кругового дихроизма поглощения рентгеновских лучей и анализа спиновой поляризации фотоэлектронов. Первый из перечисленных методов обладает сравнительно невысокой поверхностной чувствительностью, что затрудняет проведение измерений *in situ*. Реализация двух других методов связана с еще большими трудностями и возможна лишь на специализированных каналах синхротронного излучения, которые позволяют получать циркулярно-поляризованный свет либо оснащены сложным энергоанализатором с детектором Мотта.

На обычных пучках с линейной поляризацией света исследование магнитных свойств поверхности может быть проведено с помощью магнитного линейного дихроизма (МЛД) в угловом распределении фотоэлектронов [15–19]. Эффект состоит в том, что при регистрации остовных Fe  $3p$ -фотоэлектронов в узком телесном угле энергетическое положение пика и форма его линии оказываются зависящими от направления намагниченности образцов железа. Причиной возникновения эффекта является энергетическое расщепление спин-орбитального дублета Fe  $3p_{1/2}$  и Fe  $3p_{3/2}$  на подуровни с различными магнитными квантовыми числами, индуцированное взаимодействием остовного уровня с магнитно-поляризованной валентной зоной [15,16,18]. Существенную роль при этом играет дифракция фотоэлектронов, влияющая на интенсивность эмиссии электронов вдоль различных кристаллографических направлений [17]. В этой связи следует отметить, что до сих пор МЛД наблюдался лишь для объектов с достаточно совершенной кристаллической структурой — монокри-

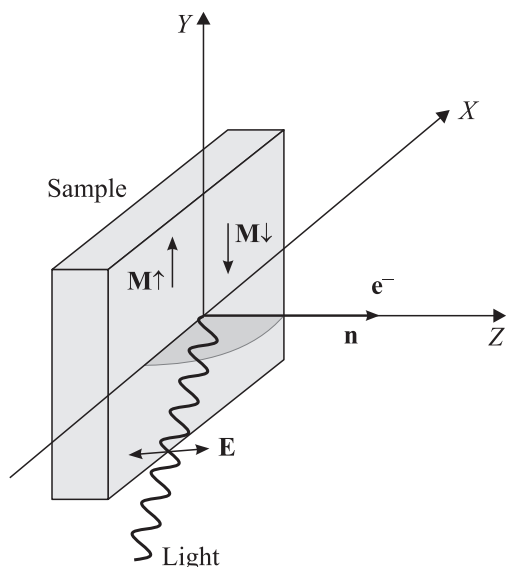


Рис. 1. Схема, иллюстрирующая геометрию эксперимента.

сталлов Fe(100) [16] и эпитаксиальных пленок и островков железа, выращенных на поверхности монокристаллов Ag(001) [15,17], Au(001) [15] и W(110) [18,19]. Поэтому неясно, в какой мере эффект проявляется для неупорядоченных слоев железа и силицидов железа.

В настоящей работе, нацеленной на выявление корреляций элементного состава, электронных и магнитных свойств силицидов железа, мы впервые изучили эффект МЛД для неупорядоченных ферромагнитных слоев, формирующихся на поверхности Si(100)  $2 \times 1$  в процессе напыления пленок железа толщиной до 10 монослоев.

Эксперименты проводились в Российско-Германской лаборатории на синхротроне BESSY (Берлин). Использовался сверхвысоковакуумный фотоэлектронный спектрометр с 200-мм полусферическим анализатором. Полное энергетическое разрешение прибора (включая разрешение монохроматора) составляло примерно 100 meV. Геометрия эксперимента схематически показана на рис. 1. Исследуемый образец облучался пучком линейно-поляризованного света, падавшего под углом  $30^\circ$  к поверхности. Эмитируемые фотоэлектроны регистрировались в конусе с полным раствором  $10^\circ$ , который был ориентирован вдоль нормали к поверхности образца. Вектор поляризации световой волны при этом лежал в горизонтальной плоскости фотоэмиссии. Энергия фотонов менялась в пределах от 110 до 600 eV. Однако большинство спектров измерено при энергии 135 eV, при которой, с одной стороны, асимметрия МЛД в эмиссии Fe 3*p*-электронов из эпитаксиальных слоев железа достигает, согласно [18], своего максимального значения, а с другой — реализуется наибольшая поверхностная чувствительность Si 2*p*-спектров [20]. Намагничивание образца проводилось с помощью пары катушек Гельмгольца, находившихся внутри вакуумной камеры. Пропусканием через них импульсов тока можно было создавать вертикальное магнитное поле, параллель-

ное поверхности образца. Для достижения насыщения остаточной намагниченности использовалось магнитное поле напряженностью примерно 1000 Oe. Магнитная асимметрия фотоэмиссии Fe 3*p*-электронов анализировалась путем сравнения спектров, измеренных для двух противоположных направлений намагниченности образца, ориентированных соответственно вверх ( $M_\uparrow$ ) и вниз ( $M_\downarrow$ ).

Исследуемые образцы изготавливались из монокристаллических пластин кремния, легированного фосфором (КЭФ-1). Разориентация их поверхности относительно грани (100) не превышала  $0.1^\circ$ . Перед загрузкой в камеру спектрометра кристаллы подвергались химической обработке по методу Ширази. Далее они кратковременно прогревались в сверхвысоком вакууме до температуры  $1200^\circ\text{C}$ , что обеспечивало получение чистой поверхности, свободной от кислородных и углеродных загрязнений. Атомное строение поверхности контролировалось методом дифракции медленных электронов. После очистки наблюдалась четкая картина типа Si(100) $2 \times 1$ .

Для нанесения на поверхность образца сверхтонких слоев железа использовался специальный источник, в котором стержень из особо чистого и тщательно обезгаженного Fe разогревался электронной бомбардировкой. Скорость напыления металла составляла  $\sim 1 \text{ ML/min}$ . При этом за один монослой (ML) атомов железа принималось покрытие, соответствующее концентрации атомов кремния на поверхности подложки ( $6.8 \cdot 10^{14} \text{ at/cm}^2$ ). Напыление металла и регистрация фотоэлектронных спектров проводились при комнатной температуре. Вакуум при измерениях составлял  $2 \cdot 10^{-10} \text{ mbar}$ .

Прежде всего кратко рассмотрим физико-химические процессы, протекающие на поверхности кремния при нанесении нескольких монослоев железа. Типичные спектры валентных электронов, измеренные для различных доз напыленного металла, показаны на рис. 2. Видно, что при нанесении первых трех монослоев Fe наблюдается

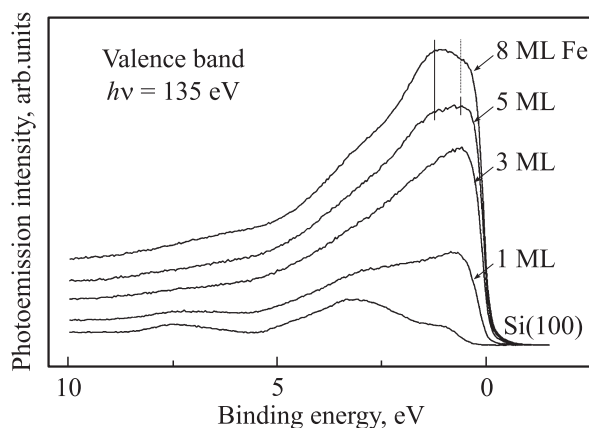
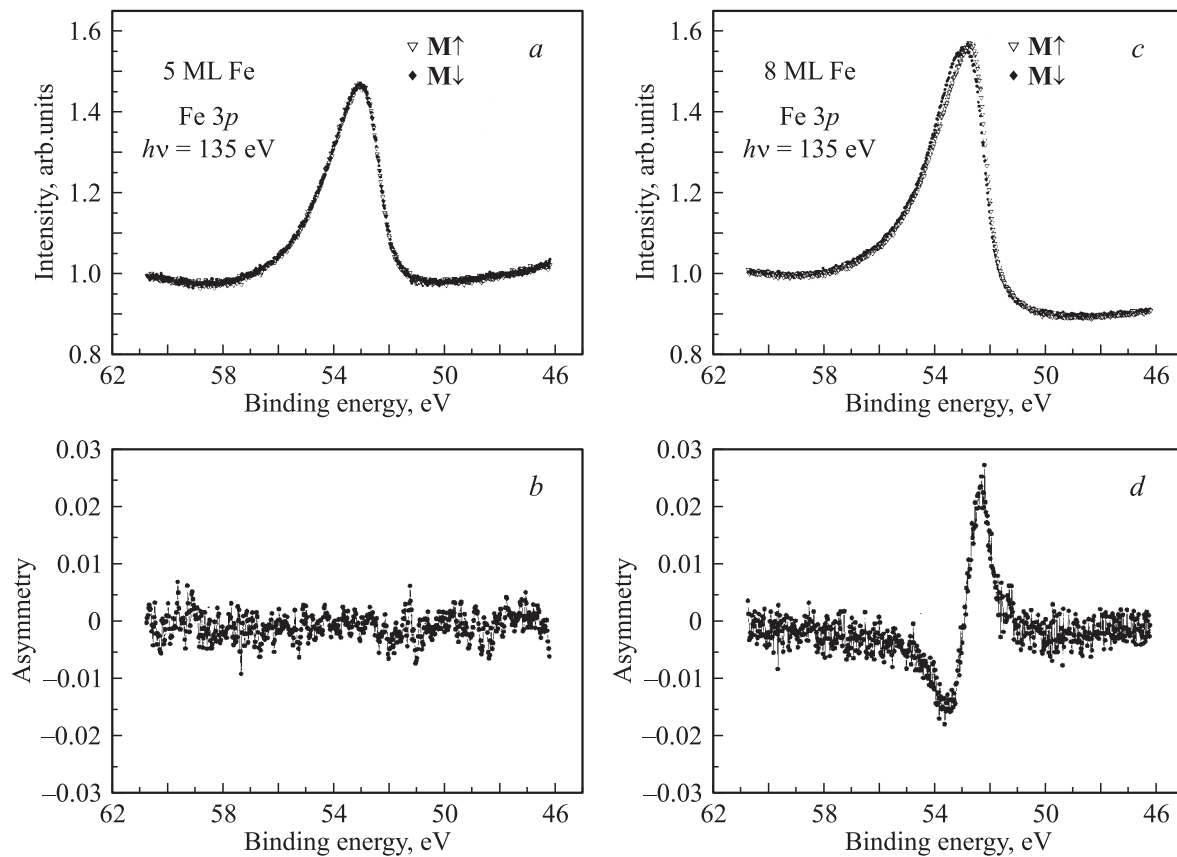


Рис. 2. Фотоэмиссионные спектры валентной зоны, измеренные после нанесения на поверхность кремния различных доз железа.



**Рис. 3.** Спектры фотовозбужденных Fe 3*p*-электронов, измеренные для двух противоположных направлений намагниченности образца, на поверхность которого было нанесено пять (*a*) и восемь (*c*) монослоев железа. *b* и *d* — зависимости магнитной асимметрии эмиссии Fe 3*p*-электронов от энергии связи фотоэлектронов (см. текст), полученные из спектров, показанных на частях *a* и *c*.

затухание особенностей, обусловленных подложкой, и формирование четкого максимума вблизи уровня Ферми, определяемого *d*-состояниями атомов железа [4,9]. Это свидетельствует об отсутствии химического взаимодействия между атомами железа и кремния и позволяет сделать вывод о том, что на поверхности Si(100)2 × 1 в этом диапазоне толщин формируется твердый раствор Fe–Si. Данное заключение подтверждается также результатами анализа Si 2*p*-спектров, проведенного в нашей более ранней работе, посвященной данной системе [12].

Увеличение степени покрытия до пяти монослоев Fe вновь приводит к заметному изменению спектра валентной зоны. Максимум вблизи уровня Ферми, обусловленный атомами железа, значительно уширяется, приобретая почти плоскую вершину, характерную для силицида Fe<sub>3</sub>Si с наибольшим содержанием железа [4,9,10]. В пользу формирования в данных условиях указанной силицидной фазы свидетельствует и динамика изменения спектров остовных электронов кремния [12]. Отмеченная форма максимума спектра валентных электронов в целом сохраняется при увеличении дозы напыленного железа до примерно 10 монослоев, что указывает на дальнейший рост силицида Fe<sub>3</sub>Si. Однако при этом в

спектре наблюдается некоторое перераспределение интенсивности между особенностями, наблюдаемыми при энергиях 0.6 и 1.3 eV. Вторая из них после напыления 8 ML Fe становится более интенсивной (рис. 2), в результате чего спектр приобретает вид, типичный для кристаллической фазы Fe<sub>3</sub>Si, синтезирующейся при повышенных температурах [21]. Однако в нашем случае пленка силицида оставалась неупорядоченной и в картине ДМЭ наблюдался лишь диффузный фон.

Таким образом, нанесение атомов железа на поверхность Si(100)2 × 1 при комнатной температуре сначала приводит к образованию твердого раствора Fe–Si, а затем, при достижении критической дозы (около 5 ML Fe), — к его трансформации в силицид Fe<sub>3</sub>Si. Рост этого силицида продолжается при дальнейшем нанесении атомов Fe (до 8–10 ML), после чего на поверхности образца формируется пленка железа [12].

Рассмотрим теперь, как меняются магнитные свойства поверхности образца с увеличением дозы напыленного железа. На первой стадии процесса (до 5 ML) в соответствии с результатами наших прежних наблюдений происходит лишь монотонное увеличение интенсивности Fe 3*p*-линии спектра и некоторый ее сдвиг в область меньших энергий связи, согласующийся с описанной

выше картиной процесса [12]. При этом намагничивание образца не оказывает никакого влияния на форму линии спектра. В качестве иллюстрации на рис. 3, *a* представлены данные, полученные в условиях, когда вектор намагниченности был ориентирован в двух диаметрально противоположных направлениях ( $M_{\uparrow}$  и  $M_{\downarrow}$ ). Видно, что кривые фактически совпадают. Тем не менее для того чтобы не пропустить момента появления возможных различий спектров, была построена зависимость магнитной асимметрии от энергии связи Fe 3*p*-фотоэлектронов. Величина асимметрии *A* рассчитывалась по следующей общепринятой формуле:

$$A = (I_{\uparrow} - I_{\downarrow}) / (I_{\uparrow} + I_{\downarrow}),$$

где  $I_{\uparrow}$  и  $I_{\downarrow}$  — интенсивность фотоэмиссии при одной и той же энергии в спектрах, соответствующих  $M_{\uparrow}$  и  $M_{\downarrow}$ .

Полученная зависимость (рис. 3, *b*) также наглядно продемонстрировала отсутствие эффекта МЛД в эмиссии фотоэлектронов после напыления пяти монослоев железа. Этот отрицательный результат был для нас несколько обескураживающим, поскольку при данном покрытии на поверхности образца уже возникает слой силицида Fe<sub>3</sub>Si толщиной порядка 5 Å, а этот материал, как известно, является ферромагнетиком с достаточно высокой температурой Кюри (560°C).

Магнитная асимметрия эмиссии Fe 3*p*-электронов была обнаружена нами лишь на следующей стадии процесса, после напыления 8 ML Fe. Полученные данные представлены на рис. 3, *c*. Видно, что спектр, соответствующий  $M_{\uparrow}$ , характеризуется более острым пиком, смещенным в область меньших энергий связи, чем спектр образца, намагниченного в противоположном направлении. Именно такие различия наблюдались в цитированных выше работах [15–19], и поэтому можно с уверенностью говорить о ферромагнитном упорядочении сформированного сверхтонкого слоя Fe<sub>3</sub>Si. Этот результат согласуется с данными, полученными ранее методом спин-поляризованной фотоэмиссии [9]. Следует, правда, отметить, что авторы этой работы наблюдали ферромагнитное упорядочение силицидного слоя при больших дозах напыленного железа, соответствующих не 8, а примерно 12 ML. Что же касается величины эффекта, то, как видно из рис. 3, *d*, магнитная асимметрия составляет ~ 3.5%. Это значение примерно в 2 раза ниже величины, полученной в аналогичных условиях для эпитаксиальных островков железа на вольфраме [19]. Различия в интенсивности проявления эффекта отражают разные магнитные свойства Fe<sub>3</sub>Si и чистого железа. При этом степень упорядоченности кристаллической структуры объекта, видимо, не оказывает решающего влияния на величину асимметрии МЛД, так как для неупорядоченной пленки железа, сформированной нами на поверхности монокристалла Si(111), эффект составлял также примерно 7%.

Сопоставление данных рис. 2 и 3 позволяет выявить определенную корреляцию в изменении электронного

строения и появления магнитных свойств у формирующегося силицида железа. Как следует из полученных данных, магнитные свойства Fe<sub>3</sub>Si были обнаружены не в момент его образования при нанесении 5 ML Fe, а при достижении некоторой критической дозы железа, оказавшейся равной 8 ML. При этой же толщине пленки Fe в спектре валентной зоны силицида произошло усиление особенности при энергии 1.3 eV, что позволяет сделать вывод о взаимосвязи этих событий. В заключение отметим, что описанные выше результаты демонстрируют перспективность использования эффекта МЛД фотоэмиссии остовных электронов для анализа магнитных свойств поверхности.

Авторы выражают признательность М.М. Бржезинской за помощь в проведении экспериментов.

## Список литературы

- [1] D. Berling, P. Bertoncini, A. Mehdaoui, P. Wetzel, G. Gewinner, B. Loegel. *J. Magn. Magn. Mater.* **237**, 181 (2001).
- [2] J.M. Gallego, R.M. Miranda. *J. Appl. Phys.* **69**, 1377 (1991).
- [3] J. Alvarez, J.J. Hinarejos, E.G. Michel, J.M. Gallego, R.M. Miranda. *Surf. Sci.* **251/252**, 59 (1991).
- [4] J. Alvarez, J.J. Hinarejos, E.G. Michel, G.R. Castro, R. Miranda. *Phys. Rev. B* **45**, 14042 (1992).
- [5] J.M. Gallego, J.M. Garcia, J. Alvarez, R.M. Miranda. *Phys. Rev. B* **46**, 13339 (1992).
- [6] K. Konuma, J. Vrijmoeth, P.M. Zagwijn, J.W.M. Frenken, E. Vlieg, J.F. Van der Veen. *J. Appl. Phys.* **73**, 1104 (1993).
- [7] M. Hasegawa, N. Kobayashi, N. Nayashi. *Surf. Sci.* **357–358**, 931 (1996).
- [8] J. Chrost, J.J. Hinarejos, P. Segovita, E.G. Michel, R. Miranda. *Surf. Sci.* **371**, 297 (1997).
- [9] R. Klaesges, C. Carbone, W. Eberhardt, C. Pampuch, O. Rader, T. Kachel, M. Gudat. *Phys. Rev. B* **56**, 10801 (1997).
- [10] P. Bertoncini, P. Wetzel, D. Berling, G. Gewinner, C. Ubhaq-Bouillet, V. Pierron Bohnes. *Phys. Rev. B* **60**, 11123 (1999).
- [11] M. Probst, R. Denecke, C. Whelan, M. Kinne, D. Borgmann, H.P. Stein. *Surf. Interface Analysis* **34**, 744 (2002).
- [12] М.В. Гомоюнова, И.И. Пронин, Д.Е. Малыгин, С.М. Соловьев, Д.В. Вялых, С.Л. Молодцов. *ЖТФ* **75**, 106 (2005).
- [13] Z.H. Nazir, C.-K. Lo, M. Hardiman. *J. Magn. Magn. Mater.* **156**, 435 (1996).
- [14] D. Berling, G. Gewinner, M.C. Hanf, K. Hricovini, S. Hong, B. Loegel, A. Mehdaoui, C. Pirri, M.H. Tuilier, P. Wetzel. *J. Magn. Magn. Mater.* **191**, 331 (1999).
- [15] Ch. Roth, F.U. Hillebrecht, H.B. Rose, E. Kisker. *Phys. Rev. Lett.* **70**, 3479 (1993).
- [16] F. Sirotti, G. Rossi. *Phys. Rev. B* **49**, 15682 (1994).
- [17] F. Hillebrecht, H.B. Rose, T. Kinoshita, Y.V. Idzerda, G. van der Laan, R. Denecke, L. Ley. *Phys. Rev. Lett.* **75**, 2883 (1995).
- [18] J. Bansmann, L. Lu, K.H. Meiwes-Broer, T. Schlathoelter, J. Braun. *Phys. Rev. B* **60**, 13860 (1999).
- [19] J. Bansmann, V. Senz, L. Lu, A. Bettac, K.H. Meiwes-Broer. *J. Electr. Spectr. Rel. Phenom.* **106**, 221 (2000).
- [20] М.В. Гомоюнова, И.И. Пронин. *ЖТФ* **74**, 1 (2004).
- [21] B. Egert, G. Panzner. *Phys. Rev. B* **29**, 2091 (1984).