

06

Влияние тепловой мощности атомарного потока Fe на формирование нанопленок Cu/Fe на Si (001)

© Н.И. Плюснин,¹ В.М. Ильященко,¹ С.А. Китань,¹ В.-Ч. Лин,² Ч.-Ч. Куо³

¹ Институт автоматики и процессов управления Дальневосточного отделения РАН, 690022 Владивосток, Россия

² Национальный педагогический университет, Тайпэй, Тайвань

³ Национальный университет Сун Ят-Сена, Гаосюн, Тайвань

e-mail: plusnin@dvo.ru

(Поступило в Редакцию 19 июля 2013 г.)

Исследован рост прослойки Fe (1.5–14 ML) и пленки Cu (~ 5 ML) на прослойке Fe в условиях пониженной (1240°C) и повышенной (1400°C) температур источника Fe и при пониженной (900°C) температуре источника Cu. Исследования проведены с помощью электронной оже-спектроскопии, дифракции медленных электронов и атомно-силовой микроскопии. В качестве источников металлов использовали тонкие плоскости Fe и Cu на Ta-фольге. Показано, что до толщины 4–5 ML в пленке Fe на Si (001) идет формирование неравновесной двумерной фазы в виде плотноупакованных атомно-гладких nanoостровков. А при толщине больше 4–5 ML неравновесная фаза Fe переходит к объемной фазе Fe и соответственно силицида Fe_xSi. При температурах источника Fe 1240 и 1400°C неравновесная фаза состоит из Fe и Si, сегрегированного на его поверхности, и соответственно из смеси Fe с Si. Рост Cu на неравновесных фазах Fe и Fe–Si идет в виде гладкого слоя Cu с сегрегированным сверху Si и соответственно в виде смеси Cu с Fe и Si. На объемных фазах Fe и Fe_xSi растут островки Cu с большими и соответственно меньшими размерами.

Введение

В многослойных тонкопленочных наноматериалах и наноструктурах для электроники важно формировать атомарно-резкие границы раздела. В частности, для спинтроники важно формировать чередующиеся атомно-тонкие слои нормальных и ферромагнитных металлов. Такие структуры могут проявлять необычные электрические и магнитные свойства (см. обзор во введении [1]), обусловленные разнообразными эффектами, включая квантовый размерный эффект [2], спин-орбитальное расщепление [3,4] и передачу спинового вращательного момента [5]. Кроме того, эти структуры могут служить новыми наноматериалами для латеральных спин-вентильных транзисторов [6].

В то же время многослойные спин-вентильные структуры широко используют легкоплавкие нормальные металлы. Эти металлы, как известно, легко перемешиваются с полупроводником при молекулярно-лучевом осаждении [7]. В частности, это относится к Cu на Si (001) [8–10]. Поэтому более тугоплавкий ферромагнитный металл лучше всего подходит в качестве первого слоя спинового вентиля, контактирующего с полупроводником. Более того, ферромагнитный металл дополнительно служит диффузионным барьером для следующего слоя Cu.

При выращивании ферромагнитного металла на полупроводнике обычно используют стандартные молекулярно-лучевые источники металла (Me). Эти источники имеют точечную область испарения и/или расположены на достаточно большом расстоянии от подложки. Поэтому, чтобы обеспечить необходимое давление Me паров вблизи полупроводниковой

подложки, Me пары в источнике нагревают до избыточно высоких температур. При осаждении Me на подложку Si высокая температура Me пара и/или температура Si подложки приводят к перемешиванию Me с Si и росту силицидов. Обычно это перемешивание уменьшают за счет понижения температуры Si подложки, а также за счет использования различных буферных прослоек, блокирующих объемную взаимодиффузию и/или ускоряющих поверхностную диффузию. Среди недавних работ — серия работ по росту Fe на Si (001) [11–13], в которых использовалось понижение температуры Si подложки и буферная прослойка Xe.

Вместе с тем влияние температуры осаждаемого пара металла и тепла, передаваемого от него к пленке, а также неравновесной двумерной фазы, формирующейся до ее перехода к объемным равновесным фазам, до сих пор в достаточной мере не исследованы. Ранее необходимость проведения такого рода исследования не возникала вследствие того факта, что вклад этих факторов был незначителен при толщинах пленок более одного нанометра.

Действительно, двадцать лет назад параметры потока и термодинамическое состояние растущего слоя металла на полупроводнике не рассматривались [14]. Тем не менее первые данные о влиянии на рост металла на полупроводнике мощности пучка высокоэнергетических ионов, полученного магнетронным распылением, появились более 20 лет назад [15]. В более поздние годы в связи с необходимостью формирования эффективных спин-вентильных приборов влиянию мощности и энергии потока ионов на формирование границ раздела металл–полупроводник и металл–металл было уделено значительно больше внимания (см., например, [16,17]).

А недавно появились теоретические работы по влиянию на этот процесс параметров атомного пучка, а именно его кинетической энергии [18], [19], а также его скорости осаждения [20].

Однако экспериментальных исследований по влиянию тепловой энергии и мощности атомного пучка фактически не было, за исключением немногих работ [21,22]. В этих работах для случая подложки Si было показано, что снижение кинетической энергии и одновременно скорости осаждения снижает глубину и степень перемешивания металла с подложкой Si и тем самым исключает формирование силицидной прослойки. Показано также, что на первом этапе роста формируется двумерная неравновесная фаза в виде смеси металла с кремнием [23] или пленки металла [24]. Эта фаза имеет неплотную и неоднородную в поперечном направлении структуру в отличие от плотной и однородной равновесной объемной фазы.

В настоящее время важно подтвердить эти результаты новыми экспериментами, проведенными в одинаковых условиях и с использованием одного и того же типа источника. Кроме того, важно исследовать влияние неравновесного фазового состояния прослойки ферромагнитного металла (Fe) на механизм роста нормального металла (Cu).

Росту Cu на Fe было посвящено небольшое количество работ. Это рост Cu на эпитаксиальных пленках Fe [25,26] и рост на монокристаллическом Fe [27]. Данные исследования показывали эпитаксиальный рост нанокристаллитов Cu с объемно-центрированной кубической структурой, затем дезориентацию пленки после 12 ML и переход к гранецентрированной кубической структуре. Что касается роста Cu на неравновесной фазе Fe на подложке Si, то таких исследований еще не проводилось. Хотя известно, что Fe на подложке Si(001) формирует необъемную фазу по крайней мере при толщине до 7–8 ML [24].

В настоящей работе мы исследовали состав и структурно-фазовое состояние двухслойных нанопленок Cu/Fe на Si(001) 2×1 в процессе их роста, а также исследовали влияние на них тепловой мощности пучка Fe.

1. Техника и методы исследования

Эксперименты проводили в сверхвысоковакуумной камере при базовом давлении $8 \cdot 10^{-10}$ Торр. Камера содержала цилиндрический анализатор для получения оже-спектров (AES), сферический анализатор дифракции медленных электронов (LEED), манипулятор образца с четырьмя степенями свободы (все — фирмы RIBER) и ленточные молекулярно-лучевые источники Fe и Cu. Для осаждения Fe при разных режимах потока был использован один и тот же источник. Кроме того, исследования были проведены по одинаковой методике и при одинаковых прочих условиях.

В качестве подложки была использована пластина кремния ($18 \times 5 \times 0.35$ mm) с поверхностью среза в ориентации (001) и с удельным сопротивлением $4.5 \Omega \cdot \text{см}$.

Подложку перед загрузкой в камеру очищали кипячением в толуоле, а после загрузки и получения базового вакуума непосредственно перед напылением — многоступенчатым термическим отжигом с подъемом температуры до 700, 1000, 1200 и 1250°C и выдержкой в течении 30 min при каждой температуре. После такой очистки картина LEED от поверхности подложки имела четкую структуру Si(100) 2×1 и характеризовалась полным отсутствием посторонних оже-пиков, кроме пиков от самого кремния.

Напыление железа на подложку производили порциями с использованием вторичного источника, выполненного в виде полоски Fe, нанесенной на Ta ленту [21]. В свою очередь, Fe осаждали на Ta ленту из первичного источника в форме вольфрамовой спирали, внутри которой был помещен маленький брусочек Fe. Осаждение Cu производили по аналогичной технологии. Но в качестве первичного источника была использована капля Cu, полученная плавлением навески Cu на V-образном нагревателе из W проволоки.

Были проведены две серии экспериментов, в каждой из которых было получено около десяти образцов. Осаждение пленок производили одновременно на две подложки Si. Угол осаждения по отношению к перпендикуляру к поверхности подложки был для первой подложки около 15°, а второй около 0°. Температуру подложек во время осаждения поддерживали вблизи комнатной.

Пленки Fe толщиной 1.5–14 ML выращивали путем их осаждения порциями около одного ML. В первой серии экспериментов каждую порцию Fe осаждали в течение 30 s при температуре Ta ленты 1400°C (высокотемпературный поток — НТП). А во второй серии — в течение 30 s при температуре Ta ленты 1240°C (низкотемпературный поток — ЛТП). После осаждения Fe осаждали пленку меди толщиной ~ 5 ML порциями около одного ML. Время осаждения каждой порции Cu было 10 s и температура Ta ленты при осаждении — около 900°C. После каждого напыления Fe и Cu регистрировали спектры AES в компьютере при энергии первичных электронов 300 eV, а также фотографировали картины LEED (картины LEED в работе не приводятся, поскольку пленки Fe и Cu были аморфными или мелкокристаллическими и давали лишь фон).

Величину порций Fe и Cu предварительно определяли по кварцевым микровесам и затем окончательно по затуханию оже-пика Si от подложки. Первую оценку по оже-пику проводили по первой порции в предположении о послыном механизме ее роста, аппроксимируя затухание оже-пика экспоненциальной кривой. Вторую оценку — с учетом найденного механизма роста по нескольким первым порциям как среднее их значение. Поскольку порции были толщиной в один и менее монослоя (ML), то степень затухания оже-пика Si от подложки не сильно зависела от механизма роста пленки. Толщину пленки оценивали путем умножения количества осажденных порций на толщину порции.

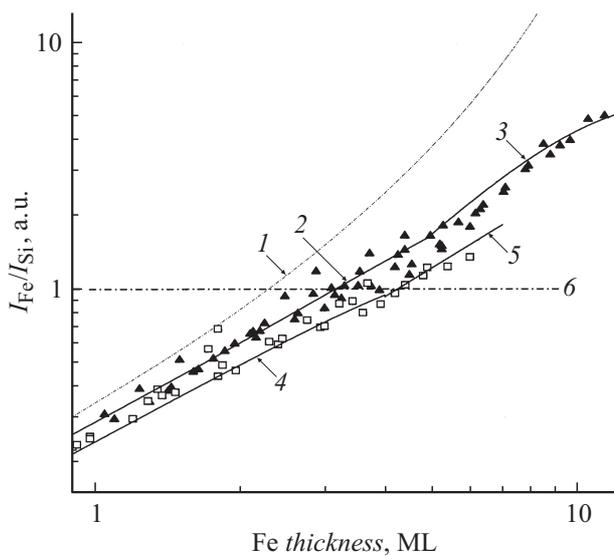


Рис. 1. Отношение (показаны только величины меньше 6) амплитуды пика Fe к амплитуде пика Si в зависимости от первоначально оцененной толщины пленки Fe для LTF (\blacktriangle) и HTF (\square). Теоретические кривые: 1 — послойный рост Fe и 2–5 — послойный рост смеси Fe–Si (см. текст). Линия 6 — отношение пиков I_{Fe}/I_{Si} для состава FeSi.

2. Экспериментальные результаты

2.1. Рост и структурно-фазовое состояние пленок Fe на Si(001)

Рис. 1 показывает черными треугольниками и белыми квадратиками экспериментальные значения отношения интенсивности оже-пика Fe к оже-пику Si в зависимости от толщины (первая оценка) пленки. Сплошными линиями показаны кривые, соответствующие моделям послойного роста: 1 — пленки Fe, 2 — смеси Fe–Si, образованной диффузией кремния из подложки, 3 —

пленки Fe с сегрегированным сверху Si толщиной 0.45 ML, 4 — смеси Fe–Si, образованной перешиванием Fe с 1.5 ML Si, и 5 — смеси Fe–Si, образованной перешиванием Fe с 3 ML Si.

Как видно из рис. 1, LTF-рост описывается в первом приближении моделью послойного роста пленки Fe сначала с диффузией в нее кремния из подложки, а затем Fe с сегрегацией на его поверхности растворенного Si. HTF-рост описывается двухстадийным перемешиванием осажденного металла с кремнием с образованием смеси различных силицидов. Сначала имеют место образование и рост одного (FeSi) и затем другого (Fe₃Si) силицида (подобно росту в системе Cr–Si (111) [23]). Как показывает рис. 1, черные треугольники систематически лежат выше белых квадратиков. Это показывает уменьшение степени перемешивания пленки Fe с подложкой Si при уменьшении тепловой мощности потока Fe. Отклонение от этой закономерности связано с разбросом углов и расстояний между источником и подложкой.

На рис. 2 приведены типичные зависимости интенсивности оже-пиков пленок Fe на Si(001) 2×1 от толщины для LTF- (рис. 2, а) и HTF-роста (рис. 2, б) пленки Fe. А на рис. 3, а, б показаны сами оже-спектры этих пленок.

Из рис. 2 видно, что модели роста, взятые из рис. 1, также хорошо описывают сами амплитуды оже-пиков Fe и Si. Стадии роста I, II на рис. 2, а, б соответствуют кривым 2, 3 и 4, 5 на рис. 1. Отметим, что при толщинах около 4 ML и 10 ML относительные амплитуды пиков Fe/Si на рис. 2, б соответствуют величинам 0.51/0.66 и 0.76/0.33, приведенным в литературе для FeSi и соответственно Fe₃Si [28].

В свою очередь, оже-спектры для LTF и HTF на рис. 3, а и соответственно рис. 3, б имеют различное изменение с толщиной положения позиционного выброса сателлитного пика в районе 77–80 eV (связанного с гибридами объемами *sp*-состояниями Si [29]) и отрицательного выброса

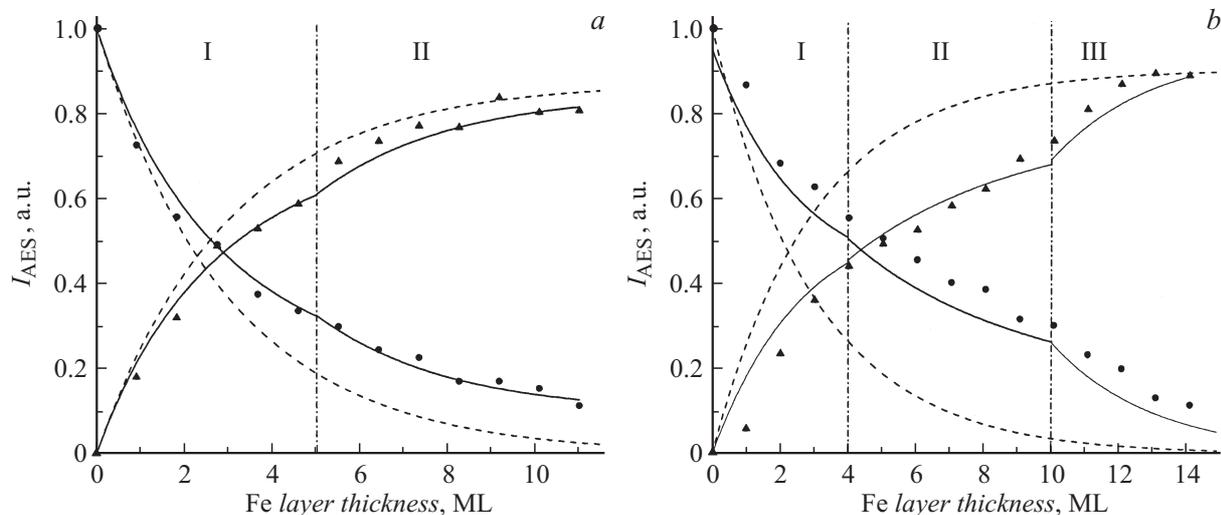


Рис. 2. Интенсивность оже-пиков Si (\bullet) и Fe (\blacktriangle) в ЭОС пленки Fe на Si(001) 2×1 в зависимости от ее толщины для LTF (а) и HTF (б). Штриховые и сплошные кривые — модели, взятые из рис. 1. Римскими цифрами обозначены стадии роста.

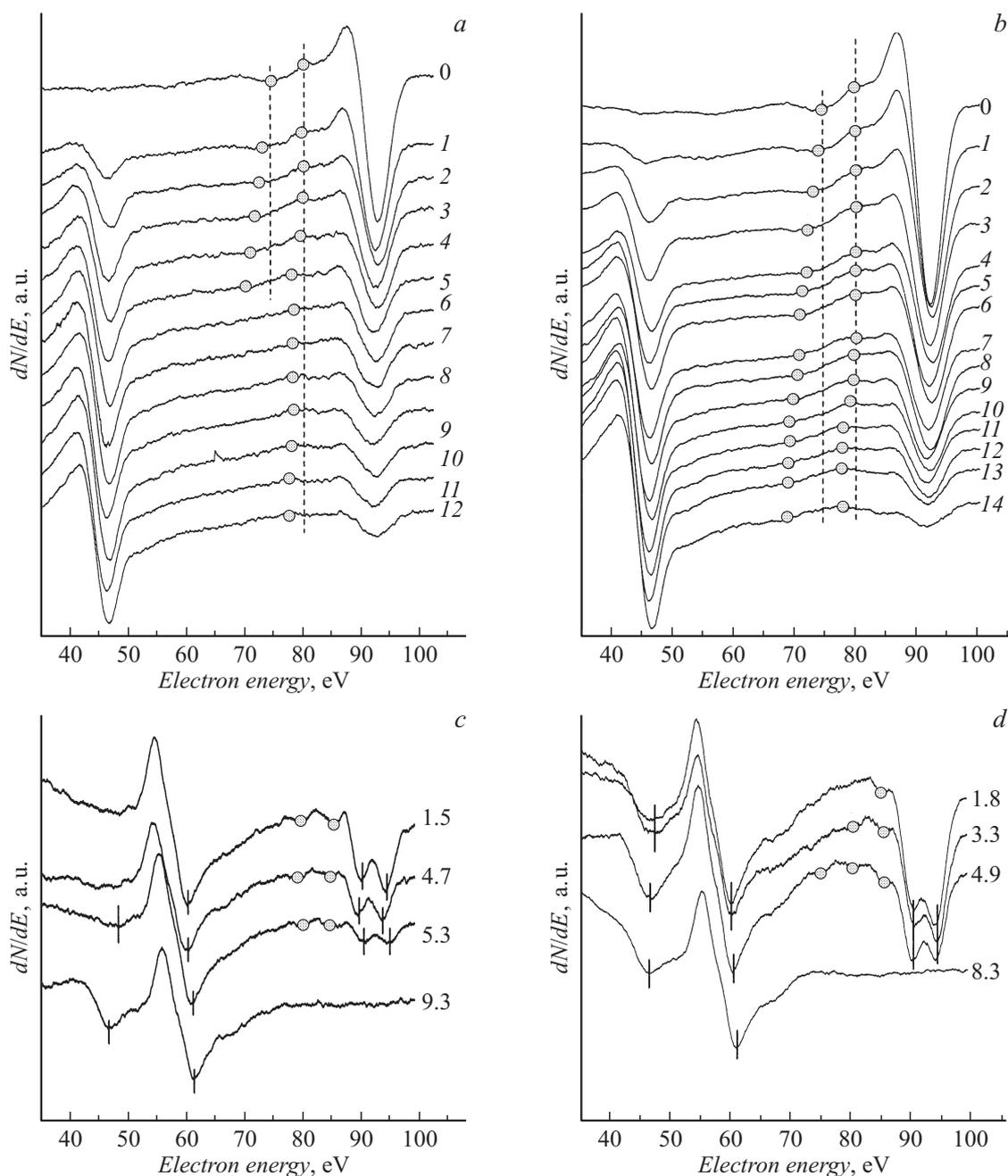


Рис. 3. Оже-спектры пленок Fe (*a, b*) и Cu/Fe (*c, d*) на Si(001) 2×1 , полученных при LTF (*a, c*) и HTF (*b, d*). Заштрихованные кружочки — положения пиков-спутников основного $L_{23}VV$ оже-пика (92 eV). Вертикальные сплошные штрихи — положения отрицательных выбросов пиков Fe (47 eV), Cu (62 eV) и Si (92 eV). Справа — толщина пленки Fe.

пика в районе 67–75 eV (связанного с объемным плазмонным спутником от основного $L_{23}VV$ оже-пика в районе 92 eV [30]).

Увеличение энергии первого пика отражает увеличение степени окружения атомов Si атомами Fe, а увеличение энергии второго пика — образование более высокой электронной плотности, связанной с формированием объемной фазы Fe (или Fe–Si). Сдвиг и затем исчезновение второго пика на рис. 3, *a* при толщинах 0–5 ML и больше 5 ML связано с формированием

химических связей на границе раздела Fe/Si и затем — двумерной неравновесной фазы Fe с сегрегированным на ней Si. Двумерная фаза имеет неоднородную электронную плотность в поперечном направлении, что исключает в ней объемные плазменные колебания одной частоты. Что касается появления и фиксации положения второго пика на рис. 3, *a* после 5 ML, то это связано с сегрегацией ~ 0.5 ML Si, который наполовину окружен Fe и остается на поверхности растущей пленки Fe.

В случае НТФ сдвиги первого и второго пиков и степень их преваляирования в спектре на рис. 3, *b* показывают, что после образования слоя первого силицида (FeSi) при 4 ML идет образование следующего силицида (Fe_3Si) до 10 ML и затем рост Fe с растворенным в нем Si. Об этом говорит изменение положения плазменного сателлита на рис. 3, *b* при толщине от 4 до 10–14 ML, соответствующее изменению энергии объемного плазмона от 21 eV в FeSi до 23 eV в Fe (см. [28,31]).

К сожалению, в литературе по формированию границы раздела Me/Si данные о тепловой мощности источников Me не приводятся. Но можно предположить, что источники имели малую площадь сечения выходящего потока. Поэтому температура металла в источниках при его напылении, как правило, была высока и эксперименты давали результаты, подобные режиму НТФ-осаждения.

Действительно, что касается границы раздела Fe/Se (001), то на ней в большинстве экспериментов наблюдалось перемешивание [32–34].

В частности, в эксперименте, где источник был выполнен в виде нити Fe, намотанной на W проволоку [34], наблюдалось трехстадийное перемешивание, подобное тому, что показано на рис. 2, *b*. Вместе с тем в эксперименте с конструкцией источника в виде катушки из проволоки Fe [35] наблюдался послойный рост. Такой источник имел, очевидно, большую площадь испарения, что позволяло испарять Fe при более низкой температуре.

2.2. Состояние и рост пленки Cu на прослойках Fe

На рис. 4 приведена интенсивность оже-пика Cu по отношению к интенсивности оже-пика Si подложки в зависимости от толщины пленки меди для различных прослоек Fe, полученных LTF- или НТФ-осаждением.

Как видно из рис. 4, пленка Cu имела мало примесей (< 25%), когда состав поверхности прослойки Fe был близок к чистому Fe. Это происходило при толщине прослойки Fe больше 7 ML либо когда эта прослойка была получена LTF-осаждением. В противном случае Cu перемешивалась с Si и/или с Fe, и количество примесей превышало 50%. При LTF-осаждении и толщине 0–2 и 5.6–6.4 ML количество примесей также превышало 50%. Это происходило вследствие диффузий Si из подложки и соответственно частичного покрытия подложки Si (см. ниже).

На рис. 5 представлены концентрации Fe, Si и Cu в пленке Cu в зависимости от толщины прослойки Fe для LTF- (*a*) и НТФ-осаждения (*b*). Концентрации компонент определяли по соотношению интенсивностей оже-пиков.

Видно, что при НТФ-осаждении с увеличением толщины прослойки Fe, концентрация Cu в среднем увеличивается, концентрация Si падает, а концентрация Fe остается на уровне 10%. Это связано с постепенным изменением состава прослойки от FeSi_X ($X > 1$) до Fe

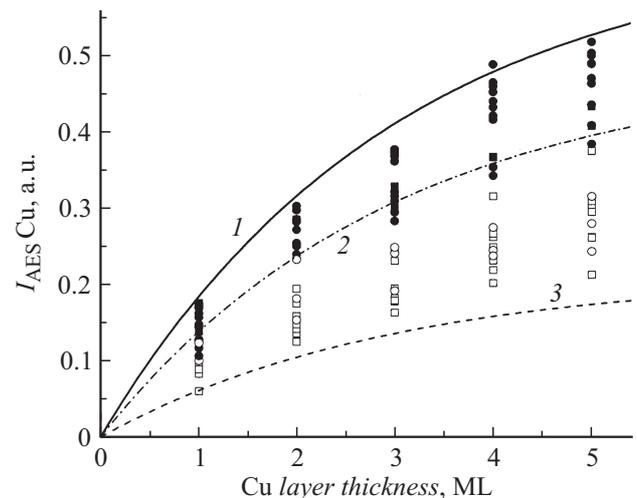


Рис. 4. Интенсивность оже-пика Cu, нормированная к интенсивности подложки Si (001), в зависимости от толщины пленки Cu на прослойках Fe. Прослойки Fe получены в режиме LTF при толщине 1.5–11 ML (●), 1.6 ML (○) и в режиме НТФ при толщине Fe < 7 ML (□) и > 7 ML (■). Кривые 1, 2, 3 — модели послойного роста пленки, содержащей соответственно 100, 75 и 33% Cu.

(см. выше) и с образованием силицида Cu после перемешивания с FeSi_X . При этом происходит выделение преципитатов Fe, поскольку растворимость Fe в Cu ограничена. Вместе с тем наблюдаются локальные вариации концентрации Cu, обратно пропорциональные концентрации Fe. Данные вариации очевидно связаны с изменением механизма роста пленок Fe из-за изменения расстояния до источника и изменения угла осаждения.

В то же время, как видно из рис. 5, *a*, в условиях LTF поведение пленки Cu с толщиной более сложное. До 4 ML имеется сходство с поведением при НТФ. Это может быть связано с индуцированным пленкой Cu смешиванием пленки Fe с подложкой Si. Но в области толщины перехода к объемной фазе (4–5.6 ML) наблюдается резкий скачок концентрации Si. В то же время концентрация Fe падает почти до нуля, а концентрация Cu увеличивается до максимума. Такое поведение пленки Cu можно объяснить переходом прослойки Fe в объемную фазу. Очевидно, осаждение 5 ML Cu дестабилизирует неравновесную прослойку Fe и в результате происходит перемешивание Fe с Cu и затем выделение слоя чистой Cu поверх слоя объемной фазы Fe. При этом Si, тоже оказавшийся в смеси, сегрегирует поверх слоя Cu, что и приводит к кажущемуся увеличению его концентрации.

При дальнейшем увеличении толщины прослойки Fe, полученной в условиях LTF, концентрация Si на ее поверхности падает (рис. 5, *a*). Очевидно, это уменьшает смачиваемость поверхности Fe и приводит к формированию менее плоских островков, что выражается в обратно пропорциональном изменении поверхности концентрации Cu.

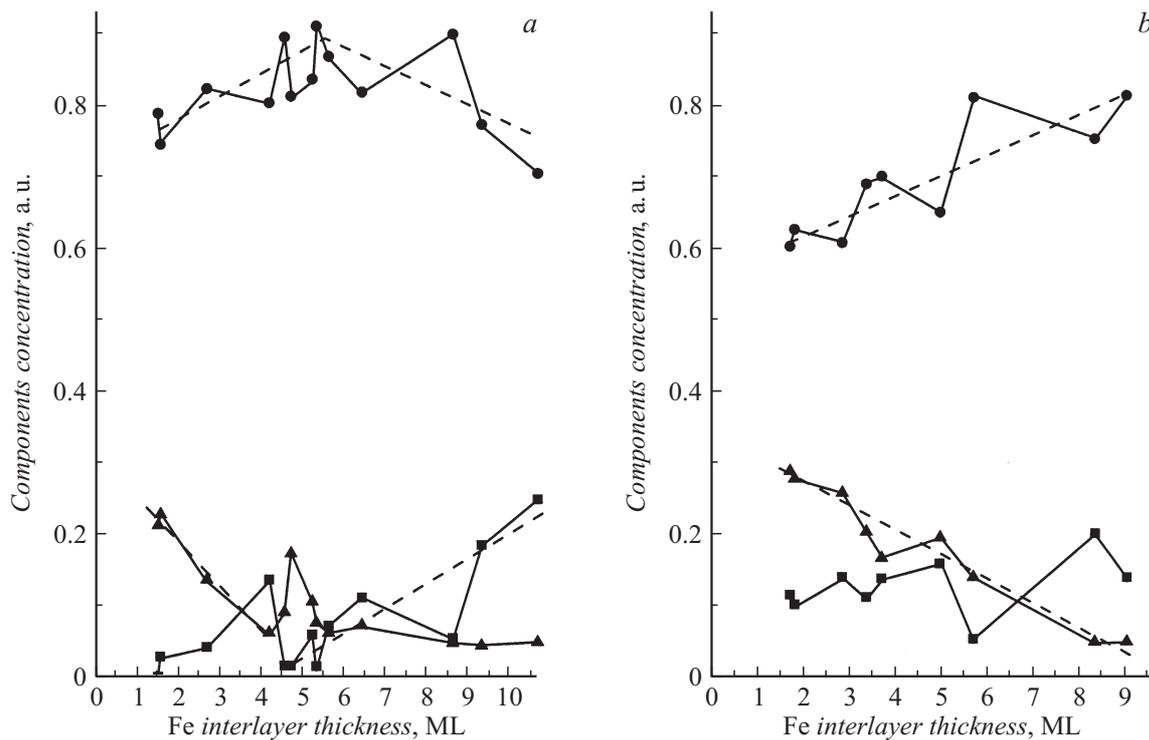


Рис. 5. Концентрация Si (▲), Fe (■) и Cu (●) в пленке Cu, определенная по данным оже-спектроскопии, зависимости от толщины прослойки Fe при LTF- (a) и HTF-осаждении Fe (b).

На рис. 3, c и d приведены оже-спектры пленок Cu на LTF- и соответственно HTF-прослойке Fe до (≤ 4.9 – 5.3 ML) и после (> 4.9 – 5.3 ML) критической толщины (d_c) перехода прослойки в объемные фазы Fe и FeSi_X ($X < 1$). Видно что, в случае LTF до d_c пик Fe почти не просматривается в отличие от случая HTF. Это показывает, что в первом случае пленка Cu полностью покрывает поверхность прослойки Fe в отличие от второго случая. Кроме того, видно, что прослойки из объемных фаз Fe и FeSi_X приводят к почти одинаковому результату независимо от режима осаждения.

Различия в оже-спектрах показывают также существенное отличие состояния пленки Cu для LTF и HTF в районе толщины прослойки Fe 4–5.5 ML. Действительно, для LTF основной $L_{23}VV$ пик Si практически отсутствует. Присутствуют только его расщепленные и дуплетные пики, обусловленные близким к 100% окружению атомов Si атомами Cu. Такой пик характерен для сегрегированного Si. Наоборот, для HTF основной $L_{23}VV$ пик Si значительно превышает по амплитуде расщепленные и дуплетные пики. Такая форма характерна для Cu_3Si [36]. Эти факты согласуются с теми выводами, к которым мы пришли выше.

2.3. Топография поверхности прослоек Fe и пленок Cu

На рис. 6 представлены AFM-изображения микрорельефа (e, h) и нанорельефа (a–d, f, g, i) пленок

Fe/Si(001) 2×1 (a–c) и Cu/Fe/Si(001) 2×1 (d–i). Изображения микрорельефа получены вычитанием из исходных сканов наклона поверхности, а изображения нанорельефа дополнительно к этому — фильтрацией низких пространственных частот. Часть пленок осаждена при LTF (a–f), а часть — при HTF (g–i). Все пленки Fe/Si(001) 2×1 было подвергнуто отжигу при 250°C и одна из них выдержке на воздухе в течение 7 (b) и 21 (c) дней.

На картинках нанорельефа пленок Fe/Si(001) 2×1 и Cu/Fe/Si(001) 2×1 при толщине прослойки Fe не более 4–5.5 ML наблюдались криволинейные светлые хребты и темные борозды от ступеней на поверхности Si(001) 2×1 (см. рис. 6, a, d, g).

Между краями ступеней (хребтами и бороздами) в пределах террас ступеней наблюдалось два типа нанорельефа. Если ширина террас была малой (соизмеримой с шириной nanoостровков), то наблюдались nanoостровки, вытянутые поперек ступеней (рис. 6, a, g). Они были почти одинаково ориентированы и располагались на приблизительно одинаковом расстоянии. Если ширина террас была большой, то наблюдались отдельные nanoостровки. Эти nanoостровки в большей (рис. 6, b) или меньшей (рис. 6, c, d) степени были упорядочены в цепочки, которые, в свою очередь, были ориентированы в одном направлении и располагались на приблизительно одинаковом расстоянии.

Ширина или диаметр nanoостровков и промежутков между ними достигали 30 nm, хотя высота nanoостровков не превышала 0.18 nm. С увеличением толщины

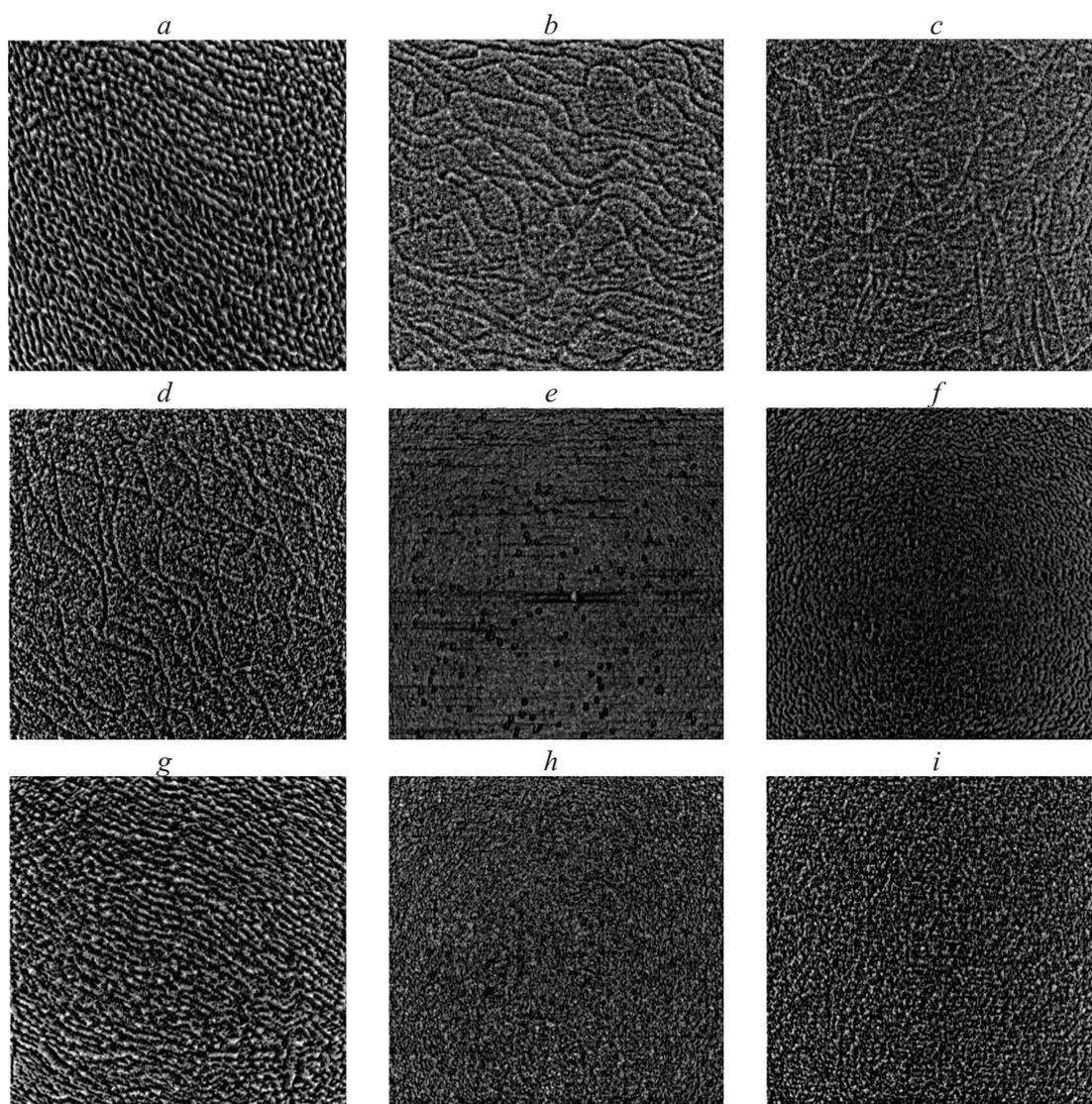


Рис. 6. AFM-изображения (a — $1 \times 1 \mu\text{m}$; b – i — $5 \times 5 \mu\text{m}$) микро- (e, h) и нано-рельефа (a – d, g) пленок Fe (a – c) и Cu/Fe (d – i) с толщиной слоя Fe 1.5 (a, d), 2 (b, c), 1.8 (g), 8.6 (e – f) и 14 ML (h, i), полученных при LTF- (a – f) и НТФ-осаждения Fe (g – i) на Si(001) 2×1 после отжига при 250°C (a – c) и выдержки на воздухе в течение 7 (b) и 21 (c) дней.

плотность наностроек сначала возрастала, а затем при толщине свыше 1–2 ML Fe она визуально оставалась неизменной. При этом умеренный (до 250°C) отжиг не влиял на плотность и размеры наностроек при толщине пленки Fe ≤ 2 ML.

Если толщина прослойки Fe менее 4–5 ML, то поверхность пленок Fe и Cu еще частично оголена (рис. 6, a – d, g). Однако при большей толщине после Fe 7–8 ML наностройки заполняют поверхность сплошным слоем, и микрорельеф подложки становится невидимым (рис. 6, f и 6, i). Действительно, после этих толщин ступени подложки уже не просматривались и появлялся новый нанорельеф высотой до 0.6 nm. При толщине около 15 ML этот рельеф состоял уже из хребтов (иногда длиной до $1 \mu\text{m}$), которые при этом имели произвольную ориентацию (см. также [24]).

В случае окисления прослоек Fe толщиной меньше 4 ML (рис. 6, c) или осаждения сверху пленки Cu толщиной 5 ML (рис. 6, d) микрорельеф подложки сохранялся, но нанорельеф становился более сглаженным и размытым, хотя и оставался еще атомарно-гладким. Это сглаживание нанорельефа, по-видимому, связано с увеличением диаметра наностроек Fe и Cu по отношению к диаметру исходных наностроек Fe. Тот факт, что пленка Cu повторяет нанорельеф прослойки Fe, согласуется с опубликованными данными о послойном характере роста Cu на прослойке Fe [25,26].

После толщины прослойки Fe в 4–7 ML в пленках Cu формировался новый микрорельеф. Он состоял из отдельных полусферических микростроек Cu на фоне слабовыраженного нанорельефа из плотноупакованных неупорядоченных мелких наностроек Cu или их греб-

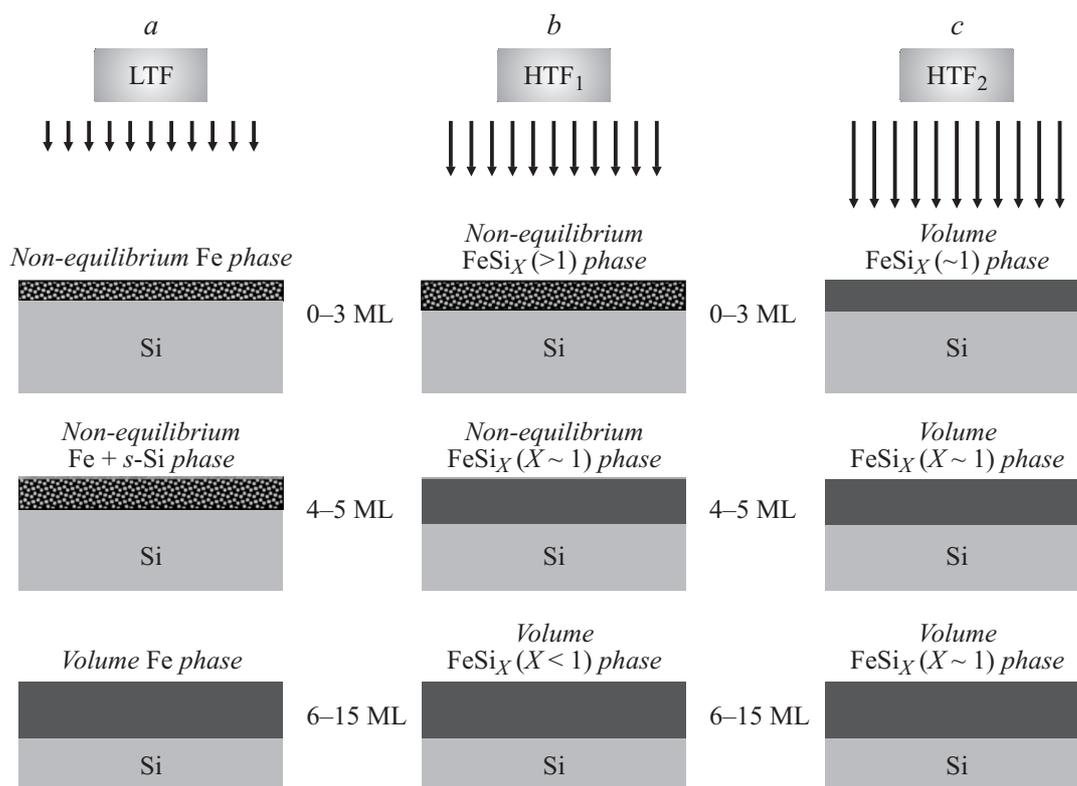


Рис. 7. Схематическая иллюстрация изменения структурно-фазового состояния пленки Fe на Si(001) в зависимости от толщины пленки и тепловой мощности потока.

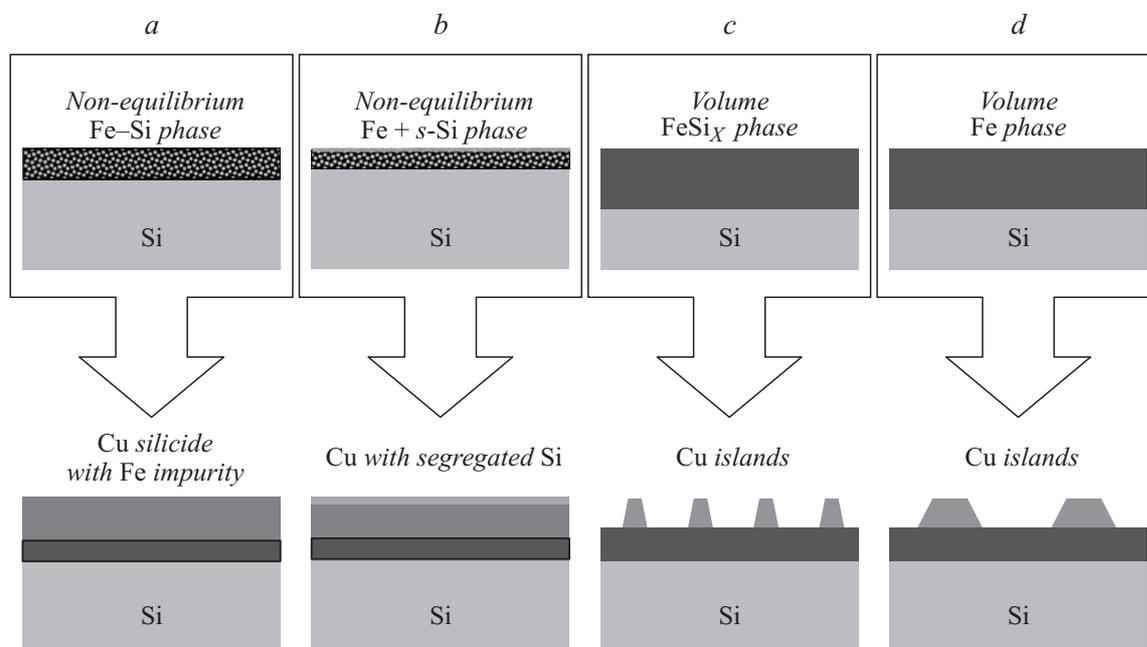


Рис. 8. Схематическая иллюстрация влияния структурно-фазового состояния прослойки Fe на механизм роста пленки Cu.

ней (рис. 6, e и 6, g). Высота рельефа достигала 10 nm. При этом поверхностная концентрация микроостровков Cu и их высота увеличивались с толщиной.

Воздействие воздушной атмосферы способствовало также появлению новых микроостровков. Эти новые микроостровки связаны, скорее всего, с ростом окисла

кремния на поверхности пленки Cu, что согласуется с литературными данными о каталитической активности Cu на Si [36]. Очевидно, что пленка Cu в просветах между островками Fe контактирует с подложкой Si, и этот контакт промотирует рост окисла Si поверх пленки Cu.

2.4. Модели роста

Поведение пленок для двух температур потока можно объяснить следующими моделями роста, которые схематически показаны на рис. 7 и 8.

При LTF атомы Fe не нагревают холодную поверхность подложки Si, и прослойка Fe растет в виде неравновесной двумерной фазы Fe (рис. 7, а). При этом в ней оказывается растворенным Si, который продиффузировав из подложки. Далее при большей толщине предел растворимости Si уменьшается из-за увеличения плотности пленки, и излишний Si сегрегирует на поверхности (слой *s*-Si на Fe). Кроме того, этот сегрегированный Si стабилизирует неравновесную фазу Fe большей толщины. После 5 ML железа происходят дестабилизация пленки *s*-Si/Fe, перемешивание и формирование объемной фазы Fe с преципитатами силицида Fe. При дальнейшем росте доля преципитатов и концентрация Si в пленке Fe падают.

При некотором среднем по мощности режиме HTF₁ прослойка Fe до и после 4–5 ML растет в виде сильно (FeSi₂) и соответственно слабо (FeSi, Fe₃Si) обогащенной Si смеси объемных силицидных фаз Fe–Si (рис. 7, б). А при достаточно большой мощности (рис. 7, в) она может расти даже в виде стехиометрического силицида (как это было обнаружено в работе [22]).

При осаждении Cu поверх прослойки Fe происходит следующее (рис. 8). Когда прослойка Fe находится в виде неравновесной фазы Fe–Si, поверхность прослойки растет силицид Cu с растворенным в нем Fe (рис. 7, а). Когда прослойка Fe находится в виде неравновесной фазы Fe с сегрегированным на ней Si, то на ней растет пленка Cu также с сегрегированным Si (рис. 7, б).

Когда толщина прослойки Fe достигает критической величины 4–5 ML и прослойка Fe переходит в состояние объемной фазы, то объемные фазы Fe–Si и Fe не смачиваются полностью медью и осаждение 5 ML Cu вызывает формирование островков Cu. При этом их высота больше, а доля поверхности, занимаемая ими, меньше в случае прослойки Fe (рис. 7, д), чем в случае прослойки Fe–Si (рис. 7, в), так как Fe меньше смачивается Cu, чем силицид Fe. Вблизи критической толщины 4–5 ML возможна также дестабилизация медью неравновесных фаз Fe–Si или Fe. В этом случае вначале происходит перемешивание и затем из смеси выделяются объемные фазы Fe–Se или Fe, а поверх них — островки Cu.

Заключение

Изучено влияние тепловой мощности молекулярного потока на механизм роста пленки Fe на Si(001)2 × 1.

Показано, что уменьшение этой мощности способствует формированию неравновесных фаз Fe. Неравновесное и объемные фазовые состояния пленки Fe существенно отличаются. Это приводит к тому, что неравновесное состояние способствует росту гладкой сплошной пленки Cu поверх пленки Fe, а объемное — островковой. При этом для роста сплошной и гладкой пленки Cu с наименьшей концентрацией примеси Fe и Si оптимальной толщиной прослойки Fe является толщина около перехода прослойки Fe к объемной фазе Fe.

Настоящая работа выполнялась в рамках совместного исследовательского проекта ДВО РАН и Национального научного совета Тайваня 13-ННС-005, а также проектов по Программам отделения физических наук РАН „Наноматериалы“ (ДВО РАН 12-И-ОФН-11) и „Спинтроника“ (ДВО РАН 12-И-ОФН-12).

Список литературы

- [1] *Quan J.J., Zhou X.W., Wadley H.N.G.* // Surf. Sci. 2006. Vol. 600. P. 4537–4547.
- [2] *Hwang Ch., Lee D., Han S.W., Kang J.S.* // J. Phys.: Condens. Mater. 2008. Vol. 20. P. 265 007.
- [3] *Carbibe C., Vescovo E., Rader O., Gudat W., Eberhardt W.* // Phys. Rev. Lett. 1993. Vol. 71. P. 2805–2808.
- [4] *Mathias S., Ruffing A., Deicke F., Wiesenmayer M., Sakar I., Bihlmayer G., Chulkov E.V., Koroteev Yu.M., Echenique P.M., Bauer M., Aeschlimann M.* // Phys. Rev. Lett. 2010. Vol. 104. P. 066 802.
- [5] *Brataas A., Kent A.D., Ohno H.* // Nat. Mater. 2012. Vol. 11. P. 372–381.
- [6] *Kuhlmann N., Swoboda Ch., Vogel A., Matsuyama T., Meier G.* Phys. Rev. B. 2013. Vol. 87. P. 104 409.
- [7] *Hiraki A.* // J. Electrochem. Soc. 1980. Vol. 127. P. 2662.
- [8] *Zhang J., Liu Ch., Shu Y., Fan J.* // Appl. Surf. Sci. 2012. Vol. 261. P. 690–696.
- [9] *Garramone J.J., Abel J.R., Sitnitsky I.L., Moore R.L., La Bella V.P.* // J. Vac. Sci. Technol. B. 2009. Vol. 27. P. 2044.
- [10] *Benouattas N., Mosser A., Bouabellou A.* // Appl. Surf. Sci. 2006. Vol. 252. P. 7572–7577.
- [11] *Tu W.-T., Wang Ch.-H., Huang Y.-Y., Lin W.-Ch.* // J. Appl. Phys. 2011. Vol. 109. P. 023 908.
- [12] *Lin W.-Ch., Chang H.-Y., Hu Y.-C., Lin Y.-Y., Hsu C.-H., Kuo Ch.-Ch.* // Nanotechnology. 2010. Vol. 21. P. 015 606.
- [13] *Lin W.-Ch., Chang H.-Y., Lin Y.-Y., Hu Y.-C., Hsu C.-H., Kuo Ch.-Ch.* // J. Appl. Phys. 2010. Vol. 107. P. 014 301.
- [14] *Heinrich B., Bland J.A.C.* Ultrathin Magnetic Structures II. Berlin: Springer-Verlag, 1994. 350 p.
- [15] *Rossi G.* // Surf. Sci. Rep. 1987. Vol. 7. P. 1–101.
- [16] *Zou W., Wadley H.N.G., Zhou X.W., Ghosal S., Kosut R., Brownell D.* // J. Vac. Sci. Technol. A. 2001. Vol. 19. P. 2414–2424.
- [17] *Zhou X.W., Wadley H.N.G., Johnson R.A., Larson D.J., Tabat N., Cerezo A., Pefford-Long A.K., Smith G.D.W., Clifton P.H., Martens R.L., Kelly T.F.* // Acta Mater. 2001. Vol. 49. P. 4005–4015.
- [18] *Nakayama T., Itaya S., Murayama D.* // J. Phys. Conf. Ser. 2006. Vol. 38. P. 216–219.
- [19] *Lee S.-G., Chunga Y.-Ch.* // J. Appl. Phys. 2009. Vol. 105. P. 034 902.

- [20] Hong Zh.-H., Hwang S.-F., Fang T.-H. // J. Appl. Phys. 2008. Vol. 103. P. 124 313.
- [21] Plusnin N.I., Milenin A.P., Iliyashenko V.M., Lifshits V.G. // Phys. Low-Dim. 2002. N 9/10. P. 129.
- [22] Плюснин Н.И., Ильященко В.М., Китань С.А., Крылов С.В. // Письма в ЖТФ. 2007. Т. 33. Вып. 11. С. 79–86.
- [23] Plusnin N.I., Galkin N.G., Lifshits V.G., Lobachev S.A. // Surf. Rev. Lett. 1995. Vol. 23. P. 439–449.
- [24] Плюснин Н.И., Ильященко В.М., Китань С.А., Крылов С.В. // Поверхность: Рентгеновские, синхротронные и нейтральные исследования. 2009. № 9. С. 86–98.
- [25] Celinski Z., Heinrich B. // J. Appl. Phys. 1991. Vol. 70. P. 5935.
- [26] Monchesky T.L., Heinrich B., Urban R., Myrtle K., Klaua M., Kirschner J. // Phys. Rev. B. 1999. Vol. 60. P. 10 242–10 251.
- [27] Unguris J., Celotta R.J., Tulchinsky D.A., Pierce D.T. // Magn. Mater. 1999. Vol. 198–199. P. 396.
- [28] Wallart X., Zeng H.S., Nus J.P., Dalmai G. // Appl. Surf. Sci. 1992. Vol. 56–58. P. 427–433.
- [29] Grant J.T., Haas T.W. // Surf. Sci. 1970. Vol. 23. P. 347.
- [30] Joyce B.A., Neave J.H. // Surf. Sci. 1971. Vol. 27. P. 499.
- [31] Colavita E., De Crescenzi M., Papagno L., Scarmozzino R., Caputi L.S., Rosei R., Tosatti E. // Phys. Rev. B. 1982. Vol. 25. P. 2490.
- [32] Gallego J.M., Miranda R. // J. Appl. Phys. 1991. Vol. 69. P. 1377.
- [33] Crecelius G. // Appl. Surf. Sci. 1993. Vol. 65/66. P. 683.
- [34] Gallego J.M., Garcia J.M., Alvarez J., Miranda R. // Phys. Rev. B. 1992. Vol. 46. P. 13 339–13 344.
- [35] Rührschopf K., Borgmann D., Wedler G. // Thin Sol. Films. 1996. Vol. 280. P. 171–177.
- [36] Stolt L., Charai A., D'Heurle F.M., Fryer P.M., Harper J.M.E. // J. Vac. Sci. Technol. A. 1991. Vol 9. P. 1501.