

05:06

## **Формирование текстуры (200) и (110) в пленках железа, полученных магнетронным распылением**

© А.С. Джумалиев, Ю.В. Никулин, Ю.А. Филимонов

Саратовский филиал Института радиотехники и электроники  
им. В.А. Котельникова РАН  
E-mail: dzhas@yandex.ru

Поступило в Редакцию 23 апреля 2013 г.

Исследовано влияние давления рабочего газа на текстуру пленок железа, полученных на подложках Si(100)/SiO<sub>2</sub> магнетронным распылением при комнатной температуре. Показано, что изменение давления рабочего газа от 1.33 до 0.09 Па приводит к смене текстуры пленок от (110) к (200), что также сопровождается переходом от столбчатой микроструктуры пленок к квазиоднородной. Показано, что шероховатость поверхности пленки зависит от давления рабочего газа немонотонно и имеет максимум в интервале давлений, отвечающих сосуществованию в пленке фаз с текстурами (110) и (200).

Интерес к получению текстурированных пленок железа связан с зависимостью физико-химических свойств наноразмерных пленок от микроструктурного строения и преимущественной кристаллографической ориентации кристаллитов (текстуры). Текстура пленок влияет на их адгезию и механическую износостойкость [1], каталитическую активность и способность к окислению [2,3]. Использование текстурированных пленок Fe(100) в качестве подслоя позволяет получать хорошо ориентированные сплавы FePt(100), обладающие высокой энергией одноосной анизотропии вдоль оси [100] и перспективные для создания сред с перпендикулярной магнитной записью [4]. В туннельных магниторезистивных структурах Fe/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Fe<sub>50</sub>Co<sub>50</sub> магнитосопротивление существенно зависит от кристаллографической ориентации электрода Fe и возрастает более чем в 3 раза при изменении кристаллической структуры пленки Fe с (100) на (211) [5].

Применительно к поликристаллическим пленкам железа, полученным магнетронным распылением, наиболее широко обсуждаются усло-

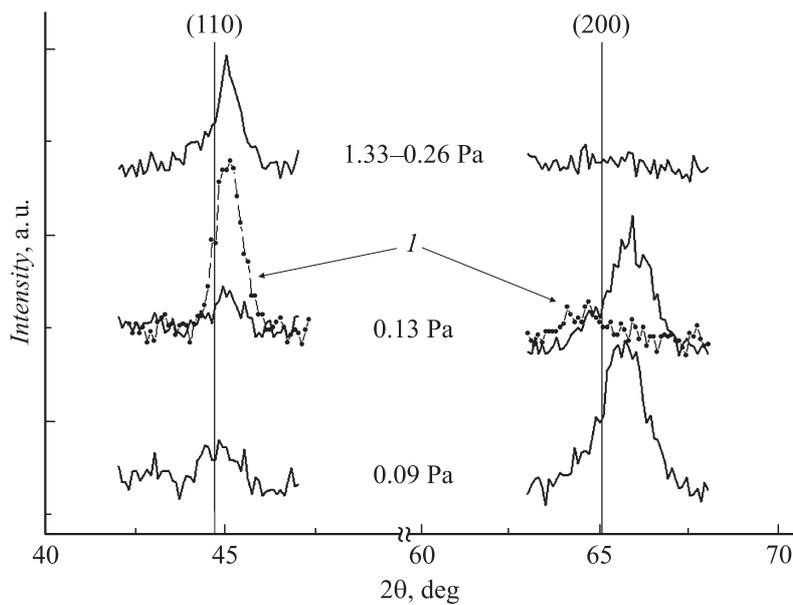
вия формирования пленок с текстурой (110) и (200). Пленки Fe(110) и Fe(200) характеризуются наименьшими значениями поверхностной энергии, соответственно 2.05 и 2.66 J/m<sup>2</sup> [6], поэтому являются наиболее устойчивыми фазами и наиболее легко реализуются в экспериментах. До сих пор пленки железа с текстурой (200) на аморфных подложках получали либо за счет осаждения на нагретую до 770 К подложку или отжига пленки с текстурой (110) при  $T \approx 870$  К [7], либо за счет снижения скорости напыления пленки  $v$  до значений  $v < 3.6$  nm/min [4]. В данной работе показана возможность получения пленок железа с текстурой (110) или (200) и с различным микроструктурным строением путем изменения давления рабочего газа  $P$  в планарной магнетронной распылительной системе.

Магнетронное распыление проводилось в вакуумной установке ВУП-5 с базовым давлением  $6 \cdot 10^{-4}$  Па. Использовалась мишень Fe (99.95%, Williams), а в качестве рабочего газа аргон марки ОЧ (99.998%). Давление рабочего газа менялось в диапазоне  $P \approx 0.09$ –1.33 Па. Постоянное напряжение на магнетроне составляло 480 В, при этом мощность разряда изменялась от 57 до 100 W, а скорость роста увеличивалась от  $v \approx 18$  до  $v \approx 30$  nm/min. Расстояние от подложки до мишени составляло 75 mm.

Пленки железа осаждались на подложки монокристаллического кремния Si(100) с термически окисленным слоем SiO<sub>2</sub> толщиной 0.3 μm. Среднеквадратичная шероховатость поверхности подложек составляла  $\sigma \approx 0.2$  nm. Перед напылением подложки очищались в ультразвуковой ванне с ацетоном и подвергались отжигу в вакууме при температуре 620–670 К в течение 30 min. Напыление проводилось на подложку при комнатной температуре  $T_s \approx 293$  К.

Структурный анализ пленок проводился с помощью рентгеновского дифрактометра ДРОН-4 в  $\text{CuK}\alpha$  диапазоне ( $\lambda_{\text{Cu}} = 0.15406$  nm). Микроструктура пленок изучалась с помощью сканирующего электронного микроскопа (СЭМ) AURIGA (Carl Zeiss). Морфология поверхности пленок исследовалась на сканирующем зондовом микроскопе Solver P47 (НТ-МДТ) в режиме полуконтактной атомно-силовой микроскопии (АСМ).

На рис. 1 приведены дифрактограммы пленок железа толщиной 90 nm, осажденных при различных  $P$ . Видно, что пленки, осажденные при  $1.33 \leq P \leq 0.26$  Па, обладают текстурой (110). В пленках, полученных при  $P < 0.15$  Па, наблюдается текстура (200). Верти-



**Рис. 1.** Дифрактограммы пленок Fe толщиной  $d \approx 90$  nm, выращенных на подложках Si(100)/SiO<sub>2</sub> при различном давлении рабочего газа при комнатной температуре подложки. Вертикальными линиями показаны положения дифракционных линий Fe(110) и Fe(200) из базы данных Международного центра по дифракционным данным (JCPDS). Кривой *I* показана дифрактограмма пленки, выращенной при  $P \approx 0.13$  Pa на подложке при температуре жидкого азота.

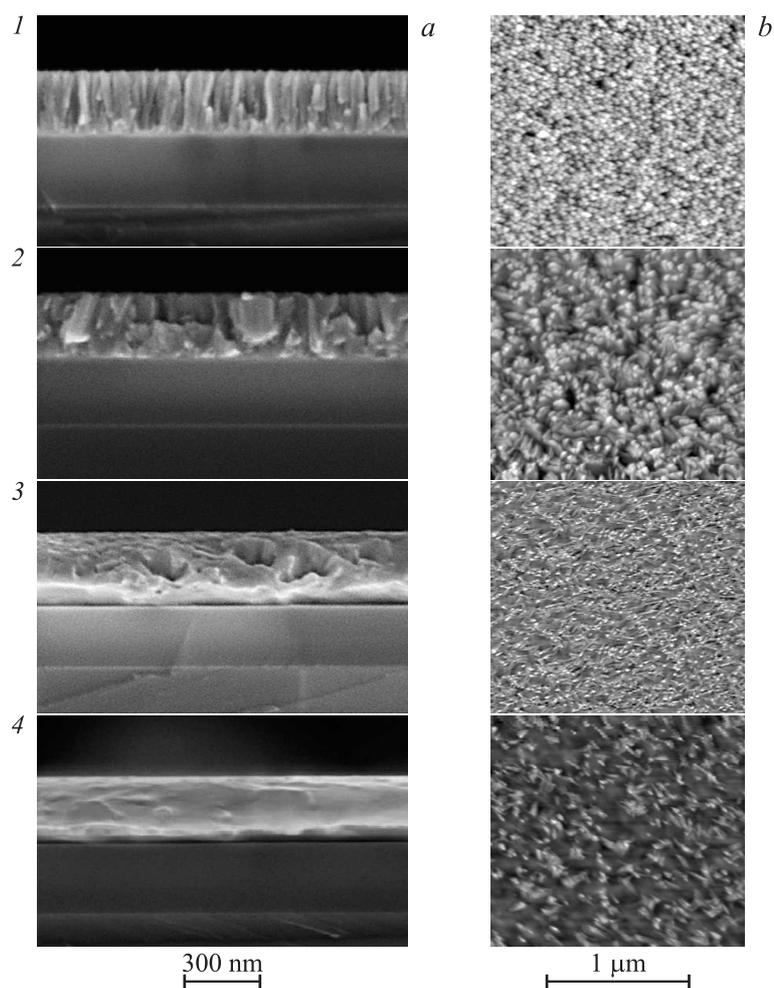
кальными линиями показаны положения максимумов дифракционных линий железа от плоскостей (110) и (200) согласно базе данных PCPDFWIN (v. 2.02, 1999) Международного центра по дифракционным данным. Смещение максимумов экспериментальных дифракционных линий относительно вертикальных линий свидетельствует о наличии деформаций сжатия в осаждаемых пленках, которые для пленок с текстурой (200) оказываются больше, чем для пленок с текстурой (110).

Изменение текстуры осажденных пленок при изменении давления рабочего газа можно объяснить изменением миграционной способности адсорбированных на подложке атомов (адатомов) железа. Длина свободного пробега атомов при давлении рабочего газа 1.33 Pa составляет

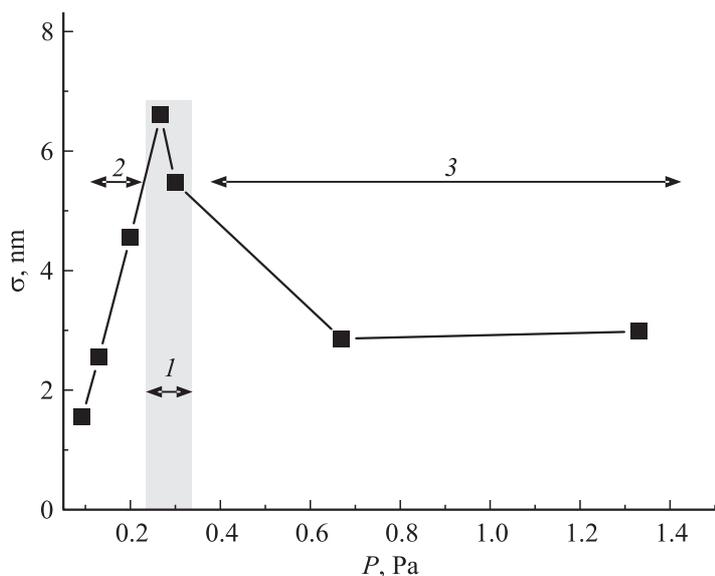
примерно 5.5 nm. В результате при своем движении к подложке атом железа сталкивается с другими атомами примерно 14 раз, теряя при этом значительную долю своей энергии, что приводит к снижению миграционной способности адатома. Кроме того, высокое давление рабочего газа приводит к увеличению количества расплываемого железа и росту количества атомов, осаждающихся на подложку. В таких условиях на подложке образуется большое количество центров зарождения пленки, что при низкой миграционной способности адатомов железа приводит к преимущественному росту зародышей в направлении поступления атомов и формированию столбчатой структуры пленки согласно модели трехмерного способа роста по Вольмеру–Веберу [8] с ориентацией плоскостей (110) с наименьшей поверхностной энергией параллельно плоскости подложки. Снижение давления рабочего газа до 0.13 Pa приводит к увеличению длины свободного пробега до 55 nm. При этом атом железа при своем движении к подложке испытывает в среднем лишь одно столкновение и сохраняет большую часть своей энергии. Одновременно с этим снижается скорость расплывания мишени и, следовательно, количество атомов железа осаждающихся на поверхность подложки. В таких условиях количество центров зарождения пленки уменьшается, а большая миграционная способность адатомов железа способствует формированию текстуры (200) [7]. При этом стабилизация фазы пленки происходит за счет минимизации энергии внутренних напряжений зерен Fe(100) [9], поскольку для железа модуль Юнга в  $\langle 100 \rangle$  направлении  $E^{[100]} \approx 130$  GPa почти вдвое меньше, чем в  $\langle 110 \rangle$  направлении  $E^{[110]} \approx 219.2$  GPa [10].

Влияние миграционной способности адатомов на формирование текстуры пленки подтверждается дифрактограммой пленки, выращенной при  $P \approx 0.13$  Pa на подложке, находящейся при температуре жидкого азота  $T_s \approx 77$  K (см. кривые 1 на рис. 1). Видно, что из-за снижения миграционной способности адатомов на холодной подложке происходит смена текстуры пленки от (200) к (110).

На рис. 2 приведены изображения поперечного сечения и поверхности пленок толщиной  $d \approx 300$  nm, выращенных при различных значениях  $P$ , полученные с помощью СЭМ (a) и АСМ (b). Видно, что при изменении  $P$  одновременно с изменением текстуры наблюдается изменение микроструктуры и морфологии поверхности пленок. В условиях высокого давления  $P \approx 1.33$ – $0.5$  Pa в пленках формируется столбчатая микроструктура (рис. 2, a1). Понижение давления рабоче-



**Рис. 2.** СЭМ-изображения поперечного сечения (*a*) и АСМ-изображения поверхности (*b*) пленок Fe толщиной 300 нм, выращенных при различном давлении рабочего газа  $P$  и обладающих различной текстурой: 1 —  $P \approx 1.33-0.5$  Па, текстура (110); 2 —  $P \approx 0.26$  Па, текстура (110); 3 —  $P \approx 0.13$  Па, текстура (200); 4 —  $P \approx 0.09$  Па, текстура (200).



**Рис. 3.** Зависимость среднеквадратичной шероховатости поверхности  $\sigma$  пленок Fe толщиной 300 нм от давления рабочего газа  $P$ . В интервале давлений  $0.2 < P < 0.26$  Па (область I) пленки имеют смешанную текстуру (110) и (200). Области давлений 2 и 3 отвечают текстурам (200) и (110) соответственно.

го газа до  $P \approx 0.26$  Па ведет к увеличению размеров зародышей в плоскости подложки (рис. 2, *a2, b2*) за счет увеличения миграционной способности адатомов. При давлении рабочего газа в 0.13–0.09 Па одновременно со сменой текстуры (110) на (200) столбчатая структура пленок переходит в квазиоднородную, состоящую из зерен большого размера (рис. 2, *a(3, 4); b(3, 4)*).

На рис. 3 приведена зависимость среднеквадратичной шероховатости поверхности пленок железа толщиной 300 нм от давления рабочего газа, полученная в результате обработки сканов АСМ с использованием программного обеспечения Image Analysis 2.0. Можно видеть, что зависимость  $\sigma = \sigma(P)$  имеет немонотонный характер. С понижением давления рабочего газа от 0.67 до 0.26 Па происходит увеличение шероховатости поверхности с 3 до 7 нм. Шероховатость пленок мак-

симальна в интервале давлений  $0.2 \leq P \leq 0.26$  Па, когда в пленке сосуществуют кристаллиты (110) и (200). При этом рост шероховатости поверхности может быть связан с разницей в величинах упругих модулей кристаллитов с ориентацией (110) и (200) в направлении нормали к пленке. Дальнейшее понижение давления рабочего газа от 0.2 до 0.09 Па приводит к снижению шероховатости до 1.7 нм, что обусловлено формированием однородной микроструктуры в пленках с текстурой (200).

Таким образом, показано, что при магнетронном распылении на постоянном токе пленок железа со скоростью  $v \approx 18-30$  нм/мин на подложку Si(100)\SiO<sub>2</sub> со среднеквадратичной шероховатостью поверхности  $\sigma \approx 0.2$  нм и температурой  $T_s \approx 293$  К снижение давления рабочего газа с 1.33 до 0.13–0.09 Па сопровождается сменой текстуры пленок с Fe(110) на Fe(200). При этом наблюдается переход от столбчатой микроструктуры пленок к квазиоднородной. На примере пленок Fe толщиной  $d \approx 300$  нм показано, что величина шероховатости поверхности пленок  $\sigma$  зависит от давления рабочего газа немонотонно и достигает минимальных значений  $\sigma \approx 2-3$  нм при давлениях, отвечающих пленкам с ярко выраженной текстурой (110) или (200), тогда как в области давлений, отвечающих сосуществованию в пленке текстур (110) и (200), достигает максимальных значений  $\sigma \approx 7$  нм. Указанная немонотонность зависимости  $\sigma = \sigma(P)$  связывается с различием модулей упругости железа в кристаллографических направлениях  $\langle 110 \rangle$  и  $\langle 100 \rangle$ , нормальных к поверхности пленки. Отметим, что подходы к управлению текстурой пленок ферромагнитных металлов могут представлять интерес при создании туннельных магниторезистивных структур методом локального анодного окисления [11,12], поскольку текстура поверхности оказывает влияние на процесс окисления [2,3].

Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ, гранты № 13-07-01023, 12-07-31155.

## Список литературы

- [1] Pauleau Y, Kukielka S, Gulbinski W, Ortega L, Dub S.N. // J. Phys. D. Appl. Phys. 2006. V. 39. P. 2803.
- [2] Flis-Kabulska I, Handke B, Spiridis N, Haber J, Korecki J. // Surface Science. 2002. V. 507–510. P. 865–871.

- [3] *Roosendaal S.J., Bakker J.P., Vredenberg A.M., Habraken F.H.* // *Surf. Sci.* 2001. V. 494. P. 197–205.
- [4] *Nakagawa S., Kamiki T.* // *J. Magn. Magn. Mater.* 2005. V. 287. P. 204–208.
- [5] *Yuasa S., Sato T., Tamura E., Suzuki Y., Yamamori H., Ando K., Katayama T.* // *Europhys. Lett.* 2000. V. 52 (3). P. 344–350.
- [6] *Wang S.G., Tian E.K., Lung C.W.* // *J. Physics and Chemistry of Solids.* 2000. V. 61. P. 1295–1300.
- [7] *He H., Zha C.L., Ma B., Zhang Z.Z., Jin Q.Y.* // *JMMM.* 2007. V. 310. P. 2656–2658.
- [8] *Reichelt K.* // *Vacuum.* 1988. V. 38. P. 1083.
- [9] *Thompson C.V.* // *Annu. Rev. Mater. Sci.* 2000. V. 30. P. 159.
- [10] *Гольдштейн Р.В., Городецков В.А., Лисовенко Д.С.* // *Письма о материалах.* 2011. Т. 1. С. 127–132.
- [11] *Shirakashi J., Takemura Y.* // *JMMM.* 2004. V. 272–276. P. 1581.
- [12] *Watanabe K., Takemura Y., Shimazu Y., Shirakashi J.* // *Nanotechnology.* 2004. V. 15. P. S566–S569.