

01:05

## Средние характеристики ансамбля кластеров кобальта в матрице меди

© М.Н. Лубов, Д.В. Куликов, Ю.В. Трушин

Санкт-Петербургский национальный исследовательский академический университет РАН, Санкт-Петербург, Россия  
E-mail: lubov@spbau.ru

Поступило в Редакцию 3 июля 2018 г.

Исследован процесс изменения среднего прогиба поверхности меди над подповерхностными кластерами кобальта и доли поверхности, занимаемой ансамблем кластеров. Рассчитаны их зависимости от времени, хорошо согласующиеся с экспериментом.

DOI: 10.21883/PJTF.2018.24.47024.17448

Впервые ансамбль подповерхностных кластеров кобальта в матрице меди при прямом эпитаксиальном осаждении кобальтовых атомов экспериментально получен в работе [1], где были определены структурные характеристики кластеров, в том числе латеральные и вертикальные размеры и концентрация. В работе [2] исследован процесс зарождения и эволюции ансамбля таких кластеров кобальта и рассчитана функция распределения кластеров по размерам. При сравнении экспериментальных данных [1] и функции распределения кластеров кобальта по размерам [2] были оценены неизвестные ранее энергетические параметры в системе кобальт–медь.

Целью настоящей работы являются теоретические оценки экспериментально измеряемых средних величин характеристик ансамблей кластеров кобальта в матрице меди (среднего прогиба поверхности  $G(t)$  и ее доли  $\Phi(t)$ , занимаемой ансамблем кластеров), проведенные на основе разработанной в [2] кинетической модели формирования ансамбля подповерхностных кластеров в системе кобальт–медь и модели трехмерного роста отдельных кластеров кобальта в матрице меди [3].

В эксперименте [1] средняя высота кластеров кобальта  $\langle H(t) \rangle$  измеряется по величине среднего прогиба поверхности  $G(t)$  над ансамблем кластеров. Как установлено в [1], увеличение средней высоты  $\langle H(t) \rangle$

кластеров по ансамблю на один монослой приводит к изменению прогиба поверхности над ним на величину  $\Delta G \approx 9 \cdot 10^{-12}$  м [1]. Тогда величина среднего прогиба поверхности  $G(t)$  может быть выражена через среднюю высоту кластеров в ансамбле с функцией распределения  $f(R, H, t)$  по размерам (радиусам  $R(t)$  и высотам  $H(t)$ ) как

$$G(t) = \frac{(\Delta G/a) \iint H(t) f(R, H, t) dR dH}{\iint f(R, H, t) dR dH} = (\Delta G/a) \langle H(t) \rangle. \quad (1)$$

Здесь  $\langle H(t) \rangle \equiv \iint H(t) f(R, H, t) dR dH / \iint f(R, H, t) dR dH$  — средняя высота кластеров по ансамблю,  $a$  — межатомное расстояние в кобальте. Отметим, что кластеры кобальта, полученные в [1], имеют форму, близкую к цилиндрической, поэтому для характеристики латеральных размеров кластера можно использовать величину радиуса  $R$  цилиндра соответствующего размера. Доля поверхности, занятая ансамблем кластеров кобальта, определяется как

$$\Phi(t) \equiv \frac{\pi \iint R^2(t) f(R, H, t) dR dH}{\iint f(R, H, t) dR dH} \iint f(R, H, t) dR dH = \pi \langle R^2(t) \rangle N_{cl}(t), \quad (2)$$

где  $\pi \langle R^2(t) \rangle = \pi \iint R^2(t) f(R, H, t) dR dH / \iint f(R, H, t) dR dH$  — средняя площадь кластера по ансамблю,  $N_{cl}(t) = \iint f(R, H, t) dR dH$  — двумерная концентрация (плотность) подповерхностных кластеров.

Таким образом, величины  $\Phi(t)$  и  $G(t)$ , измеряемые в эксперименте, можно рассчитать теоретически, используя среднюю площадь  $\pi \langle R^2(t) \rangle$  и высоту  $\langle H(t) \rangle$  кластеров по ансамблю, а также их плотность  $N_{cl}(t)$ .

Изменение плотности подповерхностных кластеров  $N_{cl}(t)$  и их размеров ( $R(t)$  и  $H(t)$ ) со временем можно оценить исходя из кинетики взаимодействия атомов кобальта при росте немонослойного кластера [2,3].

Изменение плотности подповерхностных атомов кобальта  $N_{Co}(t)$  происходит при переходе в подповерхностные слои атомов кобальта с поверхности меди (с плотностью потока  $g_{Co}$ , см. [1,2]), а также при присоединении подповерхностных атомов кобальта к растущим кластерам кобальта (с плотностью потока  $g_{Co}^{cl}(t)$ ):

$$dN_{Co}(t)/dt = g_{Co} - g_{Co}^{cl}(t), \quad (3)$$

где  $g_{Co}^{cl}(t) = \beta_{Co}(t) D_{Co} N_{Co}(t) N_{cl}(t)$  — частота актов присоединения атомов кобальта к подповерхностным кластерам кобальта,  $D_{Co}$  —

коэффициент диффузии атомов кобальта в подповерхностном слое,  $\beta_{\text{Co}}(t)$  — параметр, учитывающий эффективность захвата подповерхностных атомов кобальта кластером среднего радиуса  $\langle R(t) \rangle$  и зависящий как от периметра кластера  $2\pi\langle R(t) \rangle$  (определяет количество мест на краю кластера, куда может присоединиться атом кобальта), так и от площади поверхности кластера  $\pi\langle R^2(t) \rangle$  (определяет площадь зоны „питания“ кластера, т. е. области, откуда атомы кобальта диффундируют к кластеру) [4–8].

Изменение доли поверхности  $\Phi(t)$ , занятой подповерхностными кластерами кобальта среднего радиуса  $\langle R(t) \rangle$ , можно оценить исходя из оценки скорости присоединения подповерхностных атомов кобальта к краю первого (верхнего) слоя кластера с вероятностью  $P_1$  в виде

$$d\Phi(t)/dt = a^2 P_1 g_{\text{Co}}^{cl}(t). \quad (4)$$

При этом нужно учесть, что для атомов кобальта должно выполняться условие для вероятностей его присоединения к верхнему слою кластера  $P_1$  и к остальным слоям кластера  $P$  в виде  $P_1 + P = 1$ .

Высота подповерхностного кластера  $H(t)$  увеличивается при присоединении одного атома кобальта к слоям ниже верхнего на величину

$$\Delta H(t) = a^3 / \pi \langle R^2(t) \rangle, \quad (5)$$

при этом радиус кластера остается неизменным. Таким образом, среднюю высоту подповерхностных кластеров можно выразить как  $\langle H(t) \rangle = a + n(t)\Delta H(t)$ , где  $n(t)$  — число атомов кобальта, находящихся не в верхнем слое подповерхностного кластера. Их изменение со временем можно оценить как

$$dn(t)/dt = \frac{P}{N_{cl}(t)} g_{\text{Co}}^{cl}(t). \quad (6)$$

Тогда для величины среднего прогиба  $G(t)$  поверхности меди над кластерами на основе выражений (1) и (5) можно записать

$$G(t) = \Delta G \left( 1 + \frac{n(t)a^2}{\pi \langle R^2(t) \rangle} \right). \quad (7)$$

Подставив выражение (2) для доли поверхности  $\Phi(t)$ , занятой подповерхностными кластерами, в (4) и учитывая временную зависимость

плотности кластеров  $N_{cl}(t)$  (см. [2]), получим уравнение для средней площади подповерхностного кластера в виде

$$\frac{d[\pi \langle R^2(t) \rangle N_{cl}(t)]}{dt} = a^2 P_1 g_{Co}^{cl}(t). \quad (8)$$

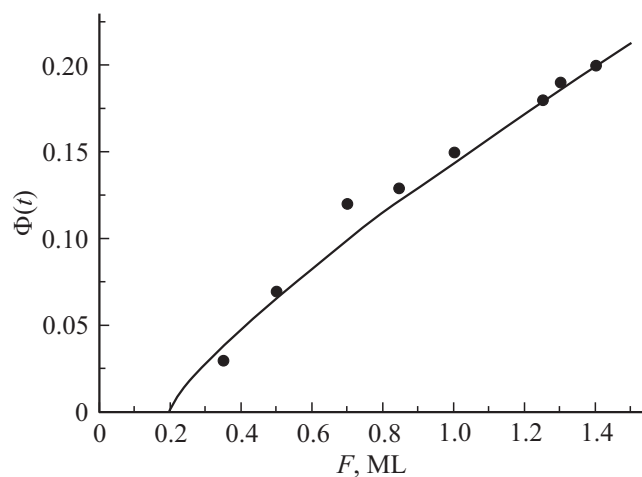
Выражения (4) и (7) позволяют найти зависимости от времени соответственно доли поверхности  $\Phi(t)$ , занятой подповерхностными кластерами кобальта среднего радиуса  $\langle R(t) \rangle$ , и среднего прогиба  $G(t)$  над кластерами, решая замкнутую систему балансных уравнений (3)–(8). Вероятности  $P_1$  и  $P$  определяются частотами  $\nu_1$  и  $\nu$  присоединения атомов кобальта к кластеру кобальта

$$P_1 = \nu_1(\nu_1 + \nu)^{-1}, \quad P = \nu(\nu_1 + \nu)^{-1}. \quad (9)$$

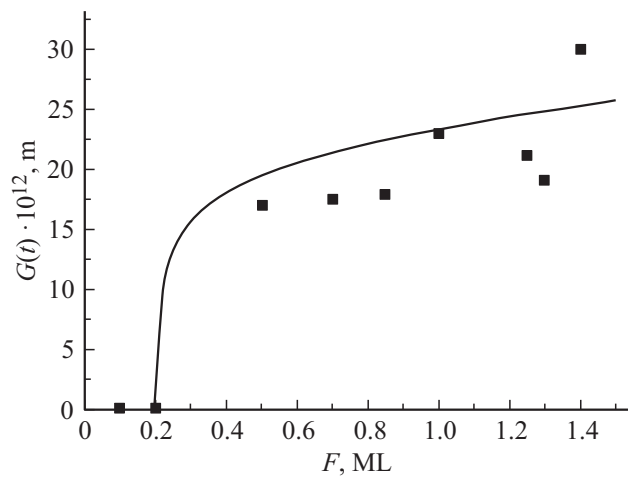
В соответствии с результатами работы [3] частоты  $\nu_1$  и  $\nu$  зависят от выигрыша в энергии за счет появления связей атомов кобальта друг с другом при присоединении атома кобальта к кластеру, а также от проигрыша в упругой энергии за счет увеличения радиуса или высоты кластера. Увеличение радиуса кластера приводит к уменьшению величины  $\nu_1$  и возрастанию величины  $\nu$ ; увеличение же высоты кластера приводит к возрастанию  $\nu_1$  и уменьшению  $\nu$  (см. выражения (10) и (12) в [3]). Кроме того, присоединение атомов кобальта к нижним слоям кластера затрудняется вследствие увеличения барьера активации миграции с глубиной проникновения кобальта в медь (см. [3]).

На рис. 1 и 2 соответственно представлено сравнение с экспериментальными данными работы [1] результатов расчетов величин  $\Phi(t)$  и  $G(t)$  в зависимости от номинального количества осажденного кобальта  $F = g_{Co}t = 3.6 \cdot 10^{-3} \text{ ML/s} \cdot t$  (см. [2]). Расчеты проводились при следующих значениях параметров:  $T = 650 \text{ K}$  [1], величина коэффициента диффузии  $D_{Co}$  оценивалась как  $D_{Co} = a^2 w_D e^{-\varepsilon/kT}$ , где  $w_D = 10^{12} \text{ s}^{-1}$  — частота порядка дебаевской,  $\varepsilon = 1.29 \text{ eV}$  — энергия миграции атомов кобальта в подповерхностной области меди [2]. Из рис. 1 и 2 следует, что результаты моделирования удовлетворительно согласуются с экспериментом.

Таким образом, разработанная в [2,3] кинетическая модель роста подповерхностных кластеров кобальта в меди адаптирована для моделирования эволюции средних величин радиуса и высоты по ансамблю подповерхностных кластеров. С помощью этой модели рассчитаны



**Рис. 1.** Зависимость доли поверхности  $\Phi(t)$ , занятой кластерами кобальта, от номинального количества осажденного кобальта  $F$ . Точки — экспериментальные данные [1], линия — расчет.



**Рис. 2.** Зависимость среднего прогиба  $G(t)$  поверхности меди над кластерами кобальта от номинального количества осажденного кобальта  $F$ . Точки — экспериментальные данные [1], линия — расчет.

зависимости от времени для доли поверхности  $\Phi(t)$ , занятой подповерхностными кластерами, и для среднего прогиба  $G(t)$  поверхности меди над подповерхностными кластерами, которые согласуются с экспериментальными данными [1]. Это позволяет заключить, что модель удовлетворительно описывает кинетику заполнения кластерами кобальта подповерхностной области меди, а также дает возможность выбирать оптимальные технологические режимы выращивания ансамблей магнитных кластеров в металлической матрице.

Авторы выражают благодарность О. Курносикову за предоставление экспериментальных данных и полезные обсуждения.

Часть работы, выполненная М.Н. Лубовым, осуществлена в рамках государственного задания Министерства образования и науки РФ № 16.9789.2017/БЧ.

## Список литературы

- [1] *Siahaan T., Kurnosikov O., Swagten H.J.M., Koopmans B.* // Phys. Rev. B. 2014. V. 90. P. 165419.
- [2] *Lubov M., Kulikov D.V., Trushin Yu.* // Phys. Status. Solidi B. 2017. V. 254. P. 1700250.
- [3] *Лубов М.Н., Куликов Д.В., Курносиков О., Трушин Ю.В.* // Изв. РАН. Сер. физ. 2014. Т. 78. В. 6. С. 682–685.
- [4] *Smoluchowski M.* // Phys. Z. 1916. V. 17. P. 557–585.
- [5] *Bartelt M.C., Stoldt C.R., Jenks C.J., Thiel P.A., Evans J.W.* // Phys. Rev. B. 1999. V. 59. P. 3125–3134.
- [6] *Amar J.G., Popescu M.N., Family F.* // Phys. Rev. Lett. 2001. V. 86. P. 3092–3095.
- [7] *Trushin Yu.V., Kulikov D.V., Safonov K.L., Gerlach J.W., Höche Th., Rauschenbach B.* // J. Appl. Phys. 2008. V. 103. P. 114904.
- [8] *Pezoldt J., Kulikov D.V., Kharlamov V.S., Lubov M.N., Trushin Yu.V.* // J. Comput. Theor. Nanosci. 2012. V. 9. P. 1941–1966.