

03,07,08

## Исследование морфологии поверхности и процессов роста при твердофазном синтезе пленок германия на $\text{Fe}_3\text{Si}|\text{Si}(111)$

© А.В. Лукьяненко, А.В. Царенко, И.А. Яковлев, А.С. Тарасов

Институт физики им. Л.В. Киренского Сибирского отд. РАН — обособленное подразделение ФИЦ КНЦ СО РАН, Красноярск, Россия

E-mail: lav@iph.krasn.ru

Поступила в Редакцию 23 октября 2025 г.

В окончательной редакции 15 ноября 2025 г.

Принята к публикации 15 декабря 2025 г.

Исследованы структурные свойства многослойных пленок ферромагнетик|полупроводник, синтезированных на подложках кремния, с целью изучения процессов роста пленок германия на силициде  $\text{Fe}_3\text{Si}$  при твердофазном синтезе. Установлено, что при отжиге нанокристаллического слоя германия толщиной менее 25 nm при температуре 370 °C происходит образование монокристаллических островков с одинаковой кристаллографической ориентацией. Установлено влияние времени отжига, толщины слоя германия и комбинированных методов синтеза на протекание процессов кристаллизации. В стационарном режиме длина поверхности диффузии атомов германия составляет около 1800 nm.

**Ключевые слова:** гибридные структуры, тонкие пленки, молекулярно-лучевая эпитаксия, твердофазная эпитаксия, дифракция отраженных быстрых электронов, атомно-силовая микроскопия.

DOI: 10.61011/FTT.2026.01.62574.294-25

### 1. Введение

Развитие спинtronики, основанной на управлении спином электрона, а не его зарядом, открывает перспективы для создания электронных устройств нового поколения, отличающихся повышенным быстродействием и сниженным энергопотреблением [1]. Ключевыми компонентами таких устройств являются магнитные туннельные переходы и спиновые вентили [2,3], создаваемые на основе структур ферромагнетик/металл/ферромагнетик и ферромагнетик|полупроводник|ферромагнетик (ФМ|ПП|ФМ) [4,5]. Вертикальные структуры ФМ|ПП|ФМ особенно привлекательны благодаря своей компактности и возможности высокой степени интеграции в полупроводниковую электронику [6,7]. Ферромагнитные слои являются источником спин-поляризованных электронов и позволяют создавать элементы магниторезистивной оперативной памяти (MRAM) [8], датчики магнитных полей [9] и нейроморфные системы [10], имитирующие работу мозга.

Среди ферромагнитных материалов особый интерес представляют сплавы Гейслера, обладающие уникальным сочетанием магнитных и электронных свойств [11–13]. Эффективность устройств на основе гетероструктур ФМ|ПП|ФМ во многом зависит от атомарного совершенства интерфейсов и кристаллического качества слоев [14]. Использование ферромагнитного силицида  $\text{Fe}_3\text{Si}$  с кристаллической структурой D0<sub>3</sub> и параметром решетки, близким к размеру основных полупроводников [15], позволяет создавать высококачественные эпитаксиальные гетероструктуры на подложках GaAs [4,16], Ge [17] и Si [18–21].

Практический интерес представляет сочетание ферромагнитных сплавов Гейслера с полупроводниками, в частности, с германием, который обладает более высокой подвижностью носителей заряда, чем у кремния, и совместимостью с современной кремниевой технологией [22,23]. Однако ключевой проблемой остается контролируемый эпитаксиальный рост германия на ферромагнитных материалах, где процессы поверхности диффузии и зародышеобразования играют определяющую роль. Создавать более качественные интерфейсы потенциально позволяет подбор материалов: силицид  $\text{Fe}_3\text{Si}$  обладает исключительно малым ( $\sim 0.08\%$ ) несответствием параметров решетки с Ge. Однако эпитаксиальный рост полупроводника на металлической поверхности  $\text{Fe}_3\text{Si}$  сопряжен с серьезными технологическими сложностями. Основная трудность заключается в несовместимости термодинамических условий роста: для получения кристаллического Ge требуются относительно высокие температуры, при которых металлическая поверхность склонна к диссоциации, химическим реакциям и взаимной диффузии [16]. Это приводит к образованию шероховатых интерфейсов и примесей, что снижает эффективность спинового транспорта через барьер.

В литературе описано несколько подходов к получению монокристаллического германия на силициде. В работе [24] эпитаксиальный рост пленок Ge контролировался верхним слоем атомов силицида. При Si-окончаниях слоев  $\text{Fe}_3\text{Si}$  возможно получение достаточно гладких пленок Ge (со среднеквадратичной шероховатостью  $R_{\text{RMS}} \approx 0.41\text{ nm}$ ), тогда как на поверхности  $\text{Fe}_3\text{Si}$  с Fe-окончанием наблюдался трехмерный эпитаксиальный

рост пленок Ge. Структурные свойства пленки Ge и верхнего слоя  $Fe_3Si$  зависят от температуры подложки во время осаждения Ge [4]. Низкотемпературный рост Ge ( $\sim 150^{\circ}C$ ) позволяет сохранить границу раздела пленок Ge и  $Fe_3Si$  четкой, без взаимодиффузии атомов (т. н. резкий интерфейс), но пленки германия остаются аморфными, тогда как температура  $\sim 325^{\circ}C$  обеспечивает эпитаксиальный рост, но сопровождается увеличением шероховатости и разориентацией кристаллитов. Перспективным направлением является снижение температуры роста германия за счет легирования оловом (Sn) [20].

Гибридный метод, сочетающий осаждение аморфного Ge на охлажденную подложку  $Fe_3Si$  с последующим контролируемым отжигом, позволяет минимизировать межфазную диффузию и формировать резкие атомарно-гладкие интерфейсы. Введение слоя Ge, выращенного методом твердофазной эпитаксии (ТФЭ) [21], обеспечивает двумерный эпитаксиальный рост при температуре  $\sim 175^{\circ}C$ . Медленный отжиг при температуре от 240 до  $380^{\circ}C$  позволяет получать пленки германия с  $R_{RMS} \approx 1\text{ nm}$  [16].

Несмотря на значительный прогресс, остаются нерешенными вопросы, связанные с влиянием различных режимов отжига на процесс кристаллизации Ge. В литературе отсутствуют систематические исследования поверхностной диффузии атомов Ge на монокристаллических поверхностях  $Fe_3Si$  методами прямого наблюдения, такими как сканирующая тунNELьная микроскопия или атомно-силовая микроскопия (ACM). Основное внимание уделяется объемной диффузии и процессам на границах раздела в сложных гетероструктурах. Существующие работы по поверхностной диффузии германия обычно ограничены исследованиями на кремниевых подложках при высоких температурах [25,26].

В настоящей работе представлены результаты изучения процессов кристаллизации пленок германия на  $Fe_3Si|Si(111)$  при температуре отжига  $370^{\circ}C$ . Методами *in-situ*-дифракции отраженных быстрых электронов (ДОБЭ) и *ex-situ*-ACM изучено влияние различных технологических параметров. Проведено сопоставление экспериментальных картин ДОБЭ с расчетными электронограммами для монокристалла Ge. Из анализа ACM-изображений сделаны выводы о кинетике процессов кристаллизации, что позволило получить новую информацию о механизмах кристаллизации германия на поверхности силицида железа.

## 2. Методы

Образцы были синтезированы в условиях сверхвысокого вакуума (базовый вакуум  $1.3 \cdot 10^{-7}\text{ Pa}$ ) методом молекулярно-лучевой эпитаксии (МЛЭ) с последующим отжигом. Испарение материалов (железо, кремний, германий) осуществлялось из термических источников типа „эффектуационных ячеек Кнудсена“ с тиглями из нитрида бора. На первом этапе на очищенную подложку Si(111)

**Таблица 1.** Технологические параметры

Название образца	Толщина Ge, nm	Температура напыления, $^{\circ}C$	Температура отжига, $^{\circ}C$	Время отжига, min
S0Ge5RT	5	RT	—	—
S0Ge5	5	370	—	—
S0Ge10	10	370	—	—
S1t90	5	RT	370	90
S1t280	5	RT	370	280
S1t280*	5	RT	360	280
S2Ge7	7	RT	370	280
S2Ge10	10	RT	370	670
S2Ge20	20	RT	370	930
S3Ge7++	7+7+7	RT	370	360+210+
S3Ge5+	5+	370	370	680
S3Ge10+	10+	370	370	670

$7 \times 7$  при температуре  $150^{\circ}C$  соосаждением железа и кремния напылялся слой силицида  $Fe_3Si$  толщиной 10 nm по отработанной методике [27], после этого образец охлаждался до комнатной температуры в течение 180 min. На следующем этапе напылялся слой германия заданной толщины при комнатной температуре (RT) и скорости потока  $0.033\text{ \AA/s}$ , после чего производился плавный нагрев до температуры  $370^{\circ}C$  со скоростью  $10\text{ K/min}$ . Технологическая толщина слоя германия и режим отжига для каждого образца указаны в таблице 1.

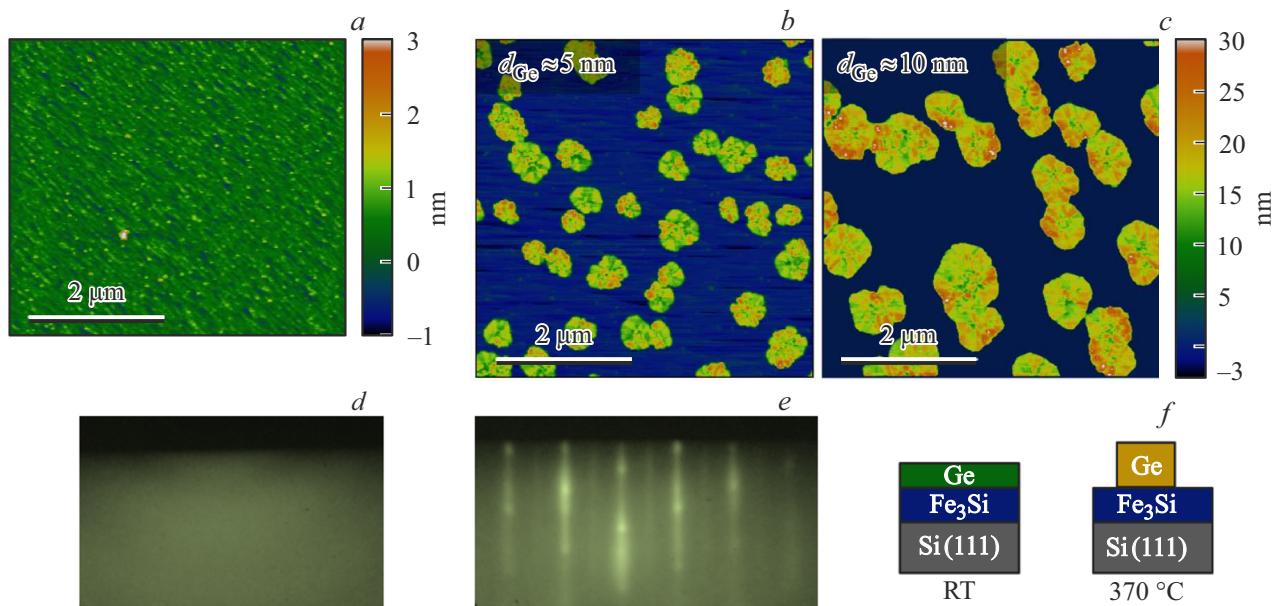
Изменение кристаллической структуры в процессе синтеза непрерывно контролировалось *in situ* методом ДОБЭ. После синтеза образцы охлаждались до комнатной температуры в два этапа для минимизации дальнейших поверхностных процессов: быстрое снижение температуры от 370 до  $150^{\circ}C$  со скоростью  $10\text{ K/min}$  и медленное охлаждение до RT в течение 120 min со скоростью  $1\text{ K/min}$ . После этого образцы извлекались из вакуумной камеры, и *ex situ* исследовалась морфология поверхности с помощью ACM в полуконтактном режиме сканирования на приборе DPN 5000 (NanoInk). Для проведения исследований были использованы кантилеверы NSG10 (Tips Nano). Обработка изображений и получение статистических величин проводилось с помощью бесплатного программного обеспечения Gwyddion 2.65 [28] и imageJ [29]. В таблице 2 приведены основные статистические параметры, полученные из ACM-данных.

## 3. Результаты

На первом этапе было проведено сравнение кристаллической структуры и морфологии поверхности пленки германия после осаждения на  $Fe_3Si$  при различных

Таблица 2. Статистические величины

Название образца	Толщина Ge (из ACM), нм	Средняя высота кристаллов Ge $\langle h \rangle$ , нм	Средний диаметр $\langle d \rangle$ , нм	Покрытие поверхности, %
S0Ge5RT	—	—	—	—
S0Ge5	—	14.7 $\pm$ 1.7	471.6	26.6
S0Ge10	—	17.6 $\pm$ 2.6	811.4	39.1
S1t90	2.7 $\pm$ 0.3	11.1 $\pm$ 1.8	391.6	3.9
S1t280	2.5 $\pm$ 0.4	12.7 $\pm$ 1.0	594.2	19.4
S1t280*	2.6 $\pm$ 0.3	15.2 $\pm$ 1.7	603.2	6.9
S2Ge7	4.2 $\pm$ 0.6	15.1 $\pm$ 2.4	1643.0	32.1
S2Ge10	7.8 $\pm$ 0.5	19.3 $\pm$ 1.9	—	10.0
S2Ge20	16.1 $\pm$ 0.7	29.2 $\pm$ 3.3	1086.4	51.5
S3Ge7++	15.1 $\pm$ 1.0	27.7 $\pm$ 2.3	1621.3	34.7
S3Ge5+	—	28.3 $\pm$ 8.0 51.5 $\pm$ 6.0	1180.1 326.9	12.5 21.6
S3Ge10+	—	45	15	—



**Рис. 1.** ACM-изображения поверхности пленок Ge, выращенных на поверхности  $\text{Fe}_3\text{Si}(111)$ , полученных при различных технологических условиях. *a*) образец S0Ge5RT, осаждение Ge на поверхность  $\text{Fe}_3\text{Si}$  при комнатной температуре; *b*) образец S0Ge5, осаждение 5 nm Ge при температуре 370 °C; *c*) образец S0Ge10, осаждение 10 nm Ge при температуре 370 °C. Диапазон линейки псевдоцвета для *(b)* и *(c)* установлен одинаковым и составляет от –3 до 30 нм. Картинки ДОБЭ от образцов: *d*) S0Ge5RT, *e*) S0Ge5. *f*) Схема слоев, полученных в результате экспериментов.

температурных режимах, схема эксперимента приведена на рис. 1, *f*. На рис. 1, *a*–*c* показаны ACM изображения для трех различных образцов: образец S0Ge5RT с толщиной слоя Ge 5 nm, осажденным при RT (рис. 1, *a*); образцы S0Ge5 и S0Ge10 с толщинами слоя германия 5 и 10 nm соответственно, выращенные при температуре

подложки 370 °C (рис. 1, *b* и *c*). На рис. 1, *d* и *e* приведены картинки ДОБЭ для образцов S0Ge5RT и S0Ge5, которые коррелируют с данными ACM-микроскопии и позволяют оценить кристалличность синтезированных пленок. На дифрактограмме (рис. 1, *d*) присутствуют лишь диффузные кольца Дебая слабой интенсивности,

которые указывают на формирование нанокристаллической структуры в пленке, где размер зерна не превышает нескольких нанометров. По данным АСМ для S0Ge5RT, наблюдается формирование сплошного равномерного слоя германия, морфология поверхности которого обусловлена нижерасположенным слоем силицида железа, значение  $R_{\text{rms}} \approx 0.19 \text{ nm}$ .

На дифрактограмме от образца S0Ge5 с технологической толщиной германия 5 nm, осажденного при температуре 370 °C (рис. 1, e), наблюдается появление точечных рефлексов на фоне картины от монокристаллической пленки  $\text{Fe}_3\text{Si}$ , что говорит о формировании монокристаллических островков одинаковой ориентации на поверхности силицида. При увеличении технологической толщины германия до 10 nm (образец S0Ge10) на картине ДОБЭ изменений не наблюдается по сравнению с S0Ge5. Для идентификации точечных рефлексов была рассчитана электронограмма для монокристалла германия (решетка типа Fdm, с параметром  $a = 0.556 \text{ nm}$ ) в направлении оси зоны  $\langle 110 \rangle_{\text{Ge}}$  (рис. 2, d), рефлексы которой полностью совпадают с точечными рефлексами на картине ДОБЭ. На рис. 1, b можно наблюдать двумерное АСМ-изображение кристаллов Ge одинаковой высоты для образца S0Ge5. При осаждении 5 nm германия на  $\text{Fe}_3\text{Si}$  при температуре 370 °C образуются случайно расположенные плоские кристаллы германия высотой  $\sim 15 \text{ nm}$ , среднее расстояние между которыми  $\sim 470 \text{ nm}$ . Кристаллы покрывают 26.6 % поверхности, их средний размер составляет  $\sim 471.6 \text{ nm}$ . Такая форма островков говорит о том, что рост в латеральном направлении происходит быстрее, чем в направлении нормали к плоскости подложки, что приводит к образованию плоских кристаллов. На рис. 1, c приведено изображение для образца S0Ge10 при осаждении в два раза большего количества германия (10 nm) при температуре 370 °C. Наблюдается явная зависимость латерального размера островков германия от технологической толщины Ge. Кристаллы в среднем высотой  $\sim 18 \text{ nm}$ , и средний размер кристаллов  $\sim 811 \text{ nm}$ . За счет коалесценции среднее расстояние между кристаллами увеличивается и составляет  $\sim 520 \text{ nm}$ , при этом они занимают  $\sim 39.1 \%$  поверхности. На АСМ заметны точки на поверхности силицида (обычно расположенные на гребнях); возможно, это центры зародышеобразования, которые сформировались в процессе остывания подложки.

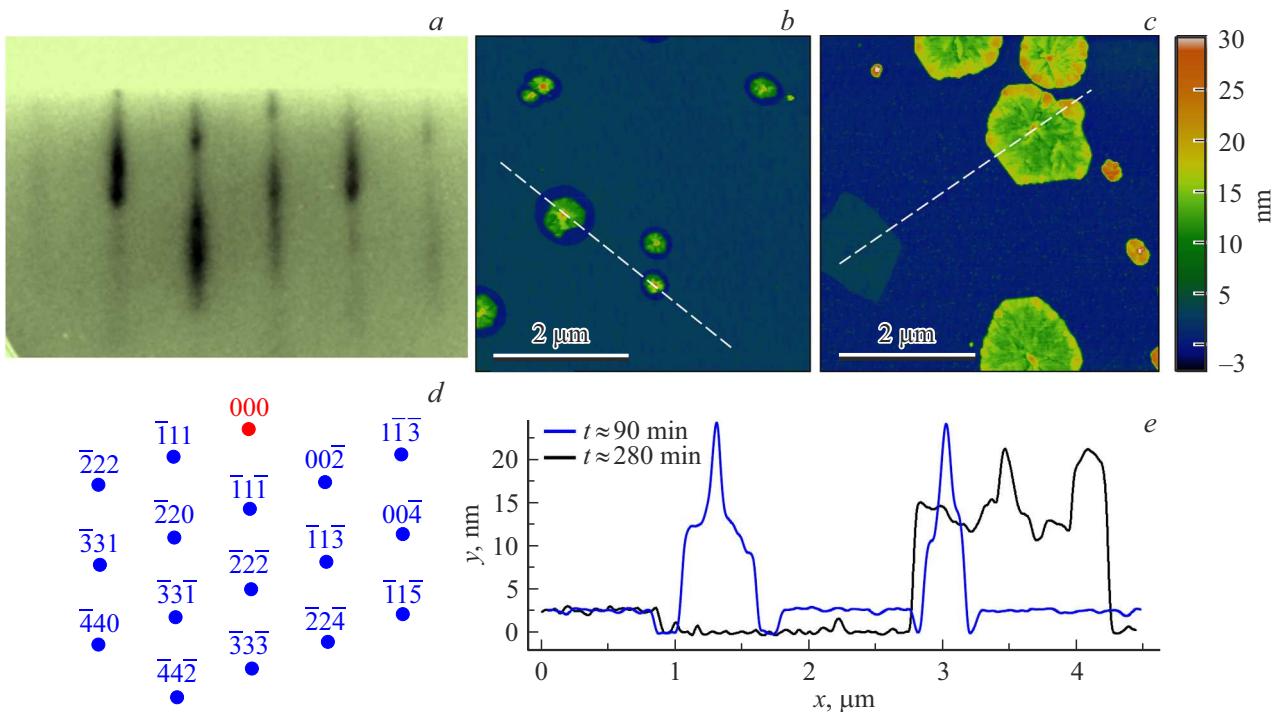
Поскольку в процессе отжига наблюдается образование отдельно расположенных монокристаллических плоских островков Ge, для более подробного изучения протекания кристаллизации Ge, было получено несколько серий образцов для исследования различных факторов, влияющих на процесс роста пленки германия. В первой серии исследовалось влияние времени отжига на кристаллическую структуру и морфологию поверхности; во второй исследовалось влияние толщины нанокристаллического слоя германия; в третьей изучались процессы роста, реализуемые при комбинированных методах синтеза: последовательный процесс ТФЭ и

осаждение германия на предварительно нагретую подложку, содержащую сформированные кристаллы германия. В таблице 1 приведены основные технологические характеристики полученных образцов.

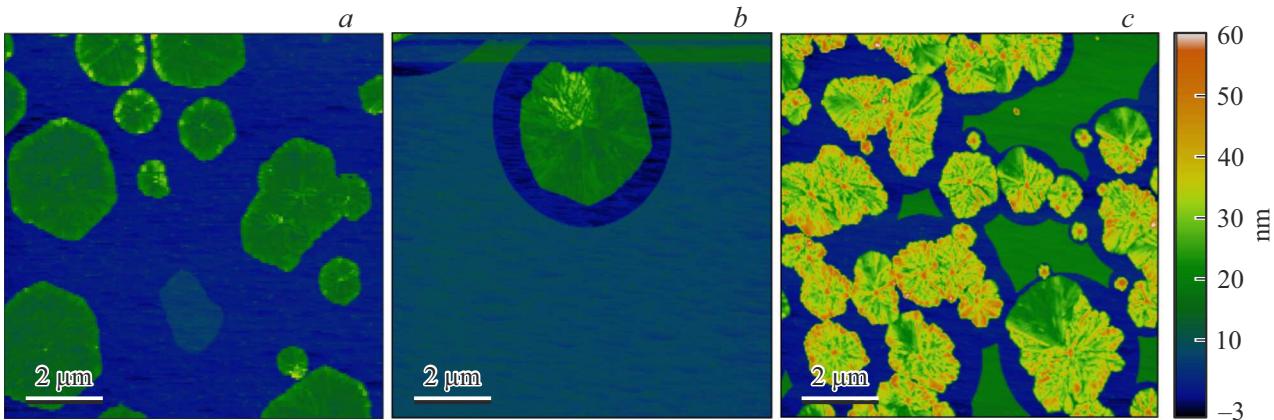
### 3.1. Влияние времени отжига

После осаждения слоя германия при комнатной температуре образцы S1t90 и S1t280 подвергались отжигу при температуре 370 °C в течение 90 и 280 min соответственно. Технологическая толщина слоя нанокристаллического германия составляет 5 nm. При исследовании кристаллической структуры пленки в процессе отжига методом ДОБЭ было установлено следующее: через 60 min после начала нагрева на дифракционной картине (не представлена в статье) начали появляться вытянутые рефлексы-„тяжи“ слабой интенсивности на фоне диффузных колец Дебая от нанокристаллической пленки германия; по истечению 90 min (образец S1t90) нагрева и отжига на дифрактограмме (рис. 2, a) наблюдается две группы рефлексов („тяжи“ и точки); при дальнейшем отжиге до 280 min (образец S1t280) на картине ДОБЭ видимых изменений не наблюдается. Анализ дифракционных данных говорит о том, что группа вытянутых рефлексов-„тяжей“ относится к монокристаллической поверхности силицида  $\text{Fe}_3\text{Si}$  [27] с незначительной шероховатостью. Группа точечных рефлексов описывается монокристаллической структурой германия (рис. 2, d). Трансформация дифракционной картины при отжиге от диффузных колец к рефлексам двух разных типов, которые соответствуют гладкой поверхности силицида  $\text{Fe}_3\text{Si}$  и монокристаллическим островкам Ge, может говорить о том, что слой германия при температуре отжига 370 °C начинает кристаллизоваться в островки, открывая поверхность нижележащего слоя силицида. Для всех последующих образцов картины ДОБЭ в процессе отжига визуально имели такую же геометрию, как на рис. 2, a, поэтому в статье они также не представлены, отличие заключалось только в различном времени начала появления рефлексов при отжиге.

На рис. 2, b показано, что отжиг при 370 °C инициирует процесс кристаллизации (образец S1t90). После отжига в течение 90 min, включая время нагрева, наблюдается начало образования кристаллов германия размером  $\sim 391.6 \text{ nm}$ , при этом кристаллы занимают малую часть поверхности, а 92.5 % покрыто слоем нанокристаллического германия толщиной  $\sim 2.5 \text{ nm}$ . На рис. 2, e приведены типичные профили сечений АСМ-изображений для образцов S1t90 и S1t280. Область вокруг кристаллов, свободная от слоя Ge, коррелирует с длиной поверхностной диффузии адатомов Ge. При продолжительном времени отжига  $t_{\text{annealing}} \approx 280 \text{ min}$ , происходит увеличение линейных размеров кристаллов германия (S1t280, рис. 2, c), наблюдается образование вторичных центров кристаллизации и постепенный рост новых кристаллов. Можно выделить два типичных расстояния между кристаллами ( $\sim 500$  и  $\sim 1500 \text{ nm}$ ), в таблице 2 приведено среднее значение. Слой германия еще остается на 10% поверхности силицида.



**Рис. 2.** Картина ДОБЭ и ACM-изображения для образцов S1t90 и S1t280. *a*) Экспериментальная картина ДОБЭ от Ge|Fe<sub>3</sub>Si|Si(111) после отжига при температуре 370 °C в течение 90 min; *b*) ACM-изображение для образца S1t90, после отжига в течение 90 min; *c*) ACM-изображение для образца S1t280, после отжига в течение 280 min. Пунктирной линией отмечены извлеченные профили. *d*) Расчетная электронограмма для монокристалла Ge в направлении оси зоны  $\langle 110 \rangle$ Ge. *e*) Профили сечения для образцов S1t90 и S1t280.



**Рис. 3.** Кристаллы германия на поверхности Fe<sub>3</sub>Si в зависимости от толщины нанокристаллического Ge. Технологическая толщина слоя составляет 7, 10 и 20 nm для образцов *a*) S2Ge7, *b*) S2Ge10 и *c*) S2Ge20. Диапазон линейки псевдоцвета составляет от −3 до 60 nm.

### 3.2. Влияние толщины слоя нанокристаллического германия

Согласно данным ДОБЭ, время отжига, необходимое для инициации кристаллизации слоя германия, демонстрирует сильную зависимость от толщины слоя, возрастаая на порядок — с 60 до 600 min — при увеличении толщины от 5 до 20 nm. По данным ACM (рис. 3), чем

больше слой германия, тем крупнее кристаллы после отжига. Увеличение толщины германия (образец S2Ge7, рис. 3, *a*) приводит к увеличению линейных размеров кристаллов до ~ 1643 nm. Кристаллы занимают ~ 32 % поверхности, а слой нанокристаллического германия — не более 3.5%. Получение тонкой сплошной монокристаллической пленки путем увеличения толщины слоя германия невозможно из-за трехмерного характера

кристаллизации. Несмотря на анизотропию скорости роста (с преобладанием роста в плоскости подложки), процесс отжига приводит к формированию островковой пленки. Увеличение толщины слоя германия до 20 nm (рис. 3, S2Ge20) приводит к коалесценции кристаллов в процессе ТФЭ. Более 51% поверхности покрыто кристаллами, и спустя 930 min отжига остается 16% нанокристаллического германия.

### 3.3. Влияние дополнительных порций германия

Наныление дополнительного слоя германия на уже сформированные островки Ge на  $\text{Fe}_3\text{Si}|\text{Si}(111)$  проводилось при комнатной температуре с последующим отжигом (рис. 4, *a* и *d*) и при температуре 370 °C (рис. 4, *b* и *c*). Рассмотрим каждый из случаев подробно. Последовательный процесс ТФЭ новых слоев германия на силициде приводит к последовательному росту уже сформированных кристаллов. На рис. 4, *a* и *d* (образец S3Ge7++) представлены ACM-изображения концентрических кристаллов германия, которые продолжают увеличиваться при каждом следующем отжиге. Для образца S3Ge7++ представлены изображения 10 × 10 и 30 × 30  $\mu\text{m}$ . На соответствующих профилях сечения (рис. 4, *e*) наблюдаются слои германия ~15 nm и кристаллы ~27 nm. Осаждение новой порции германия во время процедуры отжига приводит к появлению новых центров кристаллизации и последующему вертикальному росту. Когда длина поверхностной диффузии меньше расстояния между существующими кристаллами германия, происходит случайное зарождение новых центров роста. На рис. 4, *b* (S3Ge5+) представлено ACM-изображение, на котором присутствуют кристаллы двух латеральных размеров: крупные, ~1180.1 nm, образованные в результате ТФЭ, и кристаллы ~326.9 nm, полученные при последующем осаждении при сверхмалых скоростях потока ~0.05 nm/min. На картине ДОБЭ начинает проявляться двойникование рефлексов от Ge. В случае присутствия на поверхности силицида слоя нанокристаллического германия во время осаждения новой порции (рис. 4, *c*, образец S3Ge10+), по-видимому, длина поверхностной диффузии атомов Ge, поступающих от источника, слишком мала и вторичное кристаллообразование инициируется более равномерно, что приводит к образованию множества мелких кристаллов размером ~15 nm и высотой ~45 nm. Если островки Ge начинают сближаться друг с другом, они накладывают геометрические ограничения на латеральный рост каждого островка [30].

При осаждении Ge на подложку длина поверхностной диффузии атомов влияет на размер, плотность и расположение образующихся островков. Меньшая длина диффузии приводит к большему количеству мелких островков (высокая плотность, низкий коэффициент диффузии). Большая длина диффузии приводит к меньшему количеству крупных островков (низкая плотность, высокий коэффициент диффузии). Во время термического отжига атомы Ge диффундируют по поверхности от

слоя германия к случайно зародившемуся островку, что приводит к анизотропному радиальному росту. Толщина островков Ge изменяется значительно медленнее.

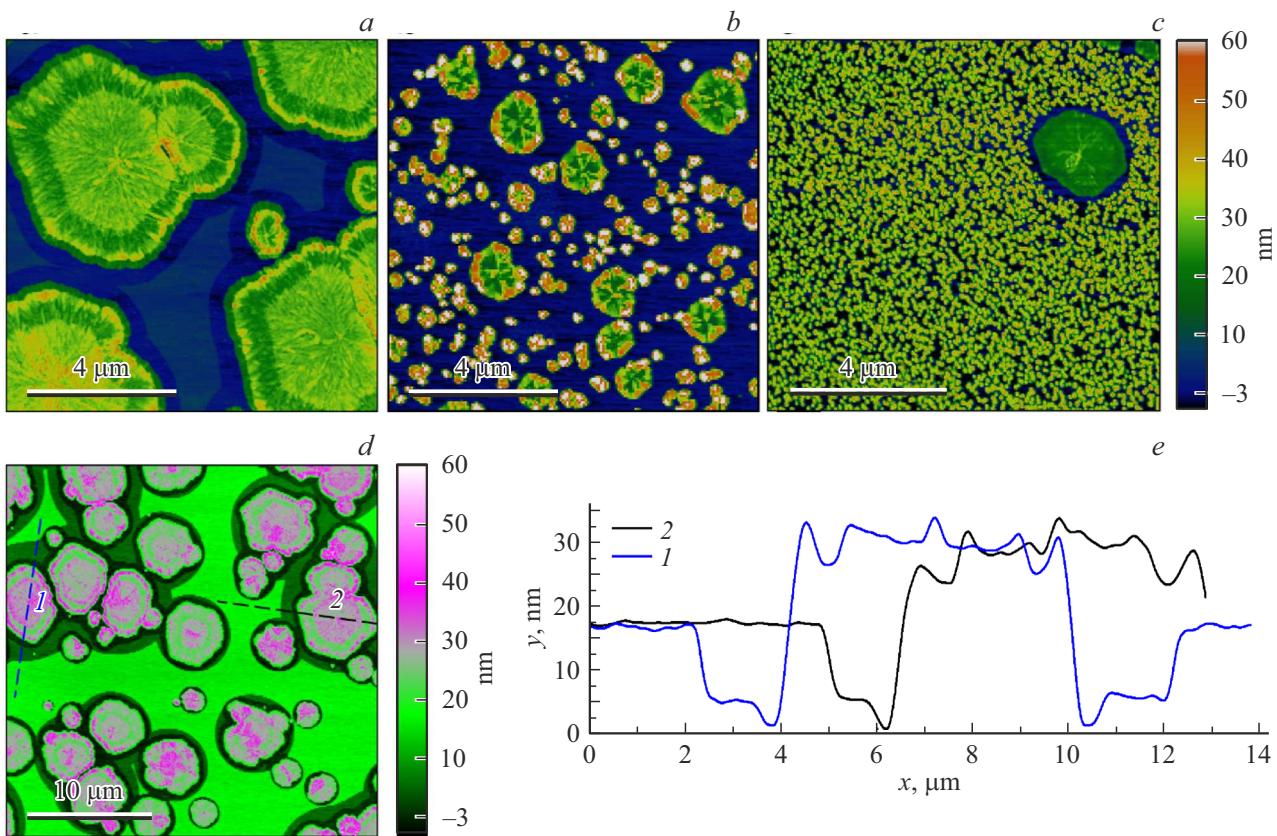
Несмотря на незначительные изменения технологических параметров (таблица 1) и идентичные картины ДОБЭ (рис. 2, *a* и *d*), морфология кристаллов германия (таблица 2) достаточно разнообразна. Данное наблюдение подчеркивает ограниченность исключительно дифракционных методов для полной характеристики тонких пленок. Ранее в литературе при формировании многослойных гетероструктур ФМ|ПП для слоя германия описывались лишь данные ДОБЭ, и лишь в редких случаях приводились величины  $R_{\text{RMS}}$  верхнего слоя. Дополнительные данные ACM могут быть полезными для лучшего понимания происходящих процессов. В свою очередь, качество последующего ферромагнитного слоя  $\text{Fe}_3\text{Si}$  зависит от морфологии и кристаллического состояния поверхности слоя германия, что определяет конечные функциональные характеристики всей гетероструктуры.

## 4. Обсуждение

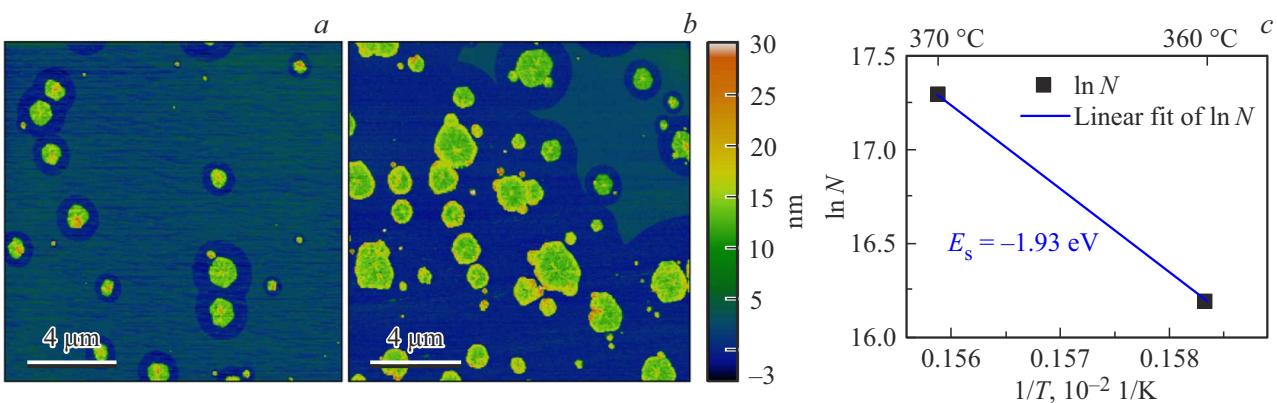
Основные кинетические параметры (энергия активации  $E_s$ , коэффициент поверхностной диффузии  $D_s$ ) были определены, принимая во внимание допущения, что плотности островков Ge на стадии насыщения не зависят от градиента химического потенциала. Следовательно, поверхностная диффузия атомов является доминирующим фактором, определяющим плотность островков. В работе [25] предложена аналитическая модель, связывающая средний размер островков с кинетическими параметрами, и предложен метод определения коэффициента поверхностной диффузии и энергии активации атомов Ge.

Дополнительно был получен образец S1t280\*, идентичный S1t280, но при меньшей температуре отжига 360 °C. Определение концентрации островков ( $N_{\text{island}}$ ) проводилось путем подсчета всех островков (вне зависимости от стадии) на кадрах ACM, представленных на рис. 5, *a* и *b*. Данный параметр показывает, сколько островков приходится на единицу площади. Для температуры 360 и 370 °C  $N_{\text{island}}$  составляет  $N_{\text{island}}^{360} \approx 1.08 \cdot 10^7 \text{ cm}^{-2}$  и  $N_{\text{island}}^{370} \approx 3.24 \cdot 10^7 \text{ cm}^{-2}$  соответственно. Возможно, полученные значения занижены из-за процессов зародышеобразования, которые приводят к слиянию и укрупнению островков. Кроме того, разрешение метода ACM ограничено, и при сканировании больших областей могли быть пропущены островки меньше критического размера, что также могло повлиять на расчеты.

Оценка поверхностного потока атомов Ge ( $J$ ) была проведена на основе анализа ACM-изображений для образцов S1t90 и S1t280 с разным временем отжига (рис. 2, *b* и *c*). За время отжига ( $\Delta t = 190 \text{ min} = 11400 \text{ s}$ ) средний объем островка  $\langle v \rangle = (\pi d^2)/4\langle h \rangle$  увеличивается с  $1.4 \cdot 10^6 \text{ nm}^3$  ( $\sim 63 \cdot 10^6$  атомов) до  $3.5 \cdot 10^6 \text{ nm}^3$



**Рис. 4.** ACM-изображения для образцов, полученных при комбинировании процессов МЛЭ роста и ТФЭ. *a, d, e*) S3Ge7++ — трехкратное повторение процедуры осаждения при КТ и отжига при  $370^{\circ}\text{C}$ . *b*) S3Ge5+ и *c*) S3Ge10+ — осаждение новой порции германия во время процедуры отжига при отсутствии и при наличии слоя германия соответственно. Диапазон линейки псевдоцвета составляет от  $-3$  до  $60\text{ nm}$ .



**Рис. 5.** *a* и *b*) Репрезентативные кадры ACM  $15 \times 15\text{ }\mu\text{m}^2$  для образцов S1t280\* и S1t280. Диапазон линейки псевдоцвета составляет от  $-3$  до  $30\text{ nm}$ . *c*) График Аррениуса (квадраты), показывающий зависимость плотности случайно зарождающихся островков от температуры при одинаковом времени отжига  $t_a = 280\text{ min}$ .

( $\sim 155 \cdot 10^6$  атомов). При расчетах предполагалось, что островки имеют форму плоских цилиндров, однако, как можно видеть из данных ACM и профилей сечения (рис. 2, *e* и 4, *e*), островки Ge имеют форму неправильных шестиугольников и выраженный пик в центре. При условии, что объем одного атома Ge  $\approx 0.0226\text{ nm}^3$ ,

средняя скорость роста островка  $\Delta n / \Delta t \approx 8070\text{ atom/s}$ . Для расчета  $J$ , т.е. количества атомов ( $n$ ), приходящих на единицу площади в единицу времени, руководствовались следующими рассуждениями. Поскольку известна плотность островков при  $370^{\circ}\text{C}$  ( $N_{\text{island}}^{370}$ ) и предполагая, что каждый островок растет со скоростью

$\Delta n / \Delta t$ , то  $J = (\Delta n / \Delta t)N_{\text{island}} \approx 0.0026$  атомов/( $\text{nm}^2 \cdot \text{s}$ ) =  $= 2.6 \cdot 10^{11}$  атомов/( $\text{cm}^2 \cdot \text{s}$ ). Значение скорости потока достаточно маленькое, поскольку в нашем случае присутствует только поток атомов из слоя нанокристаллического германия. С использованием выражения  $N_{\text{island}} \propto \exp((2E_s)/(k_B T))$ , которое связывает плотность островков с энергией активации поверхностной диффузии  $E_s$  через вероятность преодоления энергетического барьера для зародышеобразования [25], было получено значение энергии активации  $E_s = -1.93 \text{ eV}$ . На рис. 5, с представлен график Аррениуса.

Энергия активации для поверхностной диффузии всегда существенно ниже, чем энергия активации для объемной диффузии, поскольку энергетические барьеры на поверхности меньше [31]. Отрицательное значение  $E_s$  является следствием того, что концентрация островков возрастает с ростом температуры, и может указывать на сильную связь между Ge и подложкой ( $\text{Fe}_3\text{Si}$ ), в отличие от классического случая [25], когда рост температуры приводит к увеличению длины поверхностной диффузии и уменьшению концентрации островков. В классической теории плотность центров зародышеобразования обратно пропорциональна длине диффузии. Чем выше температура подложки, тем больше у атомов энергии для диффузии, тем дальше они могут мигрировать. Чем дальше атомы уходят от места падения, тем реже они встречаются и образуют островки.

Коэффициент поверхностной диффузии  $D_s$  при температуре  $370^\circ\text{C}$  можно найти, используя известное уравнение

$$D_s = D_0 \exp(|E_s|/k_B T) \\ = D_0 \exp(-1.93/k_B T) = D_0 7.86 \cdot 10^{-16} \text{ cm}^2/\text{s}$$

(в уравнение Аррениуса подставляется положительное значение). Основная сложность остается с определением предэкспоненциального множителя  $D_0$ , который во многом зависит от режима роста. Косвенно,  $D_s$  можно оценить из анализа данных ACM и формулы для длины поверхностной диффузии  $\lambda = \sqrt{D_s \tau_s}$ , где  $\tau_s$  — время жизни атома на поверхности. В стационарном режиме, когда рост ограничен диффузией,  $\lambda \sim L$ , т.е. среднему расстоянию между островками:  $\langle L \rangle = 1824.4 \pm 821.3 \text{ nm} = 1.8 \cdot 10^{-5} \text{ cm}$  (при  $370^\circ\text{C}$  для образцов S1t280 и S1t90). За время  $\Delta t$  средний пройденный атомом путь  $\lambda = \sqrt{D_s \Delta t}$ , тогда  $D_s \approx \langle L \rangle^2 / \Delta t = 2.9 \cdot 10^{-14} \text{ cm}^2/\text{s}$  и  $D_0 = D_s / \exp(|E_s|/k_B T) = 37.1 \text{ cm}^2/\text{s}$ . Полученные результаты основаны на прямой связи длины диффузии со средним расстоянием между островками. Более точную картину может дать модель диффузионно-ограниченного роста, предложенная в [30]. Множитель  $D_0$  может сильно зависеть от модели роста и обычно значения  $D_0$  для поверхностной диффузии лежат в диапазоне  $10^{-5} - 10^2 \text{ cm}^2/\text{s}$  [32]; в нашем случае значение лежит в разумных пределах. Коэффициент  $D_s$  указывает на низкую подвижность атомов германия на поверхности силицида. Низкие значения коэффициента диффузии ( $10^{-16} - 10^{-12} \text{ cm}^2/\text{s}$ ) являются характерными для полупроводников [33].

## 5. Заключение

Исследованы процессы кристаллизации сплошных нанокристаллических пленок германия толщиной 5–20 нм на поверхности монокристаллического силицида железа  $\text{Fe}_3\text{Si}|\text{Si}(111)$  при температуре  $370^\circ\text{C}$ . Из анализа данных ДОБЭ и ACM установлено, что при нагреве происходит кристаллизация слоя германия в монокристаллические островки плоской формы с кристаллографическим соотношением относительно подложки  $\langle 110 \rangle_{\text{Ge}} \parallel \langle 112 \rangle_{\text{Si}}$  и  $\langle 111 \rangle_{\text{Si}} \parallel \langle 111 \rangle_{\text{Ge}}$ . Экспериментально установлено, что морфология и размер кристаллов германия демонстрируют выраженную зависимость от технологических параметров синтеза. С увеличением времени отжига происходит увеличение размера кристаллов, с преобладанием роста в латеральном направлении. При увеличении толщины нанокристаллического слоя увеличивается время начала кристаллизации. Применение комбинированного метода синтеза инициирует образование новых центров кристаллизации, что существенно влияет на конечную микроструктуру пленки. На основании количественного анализа данных ACM определены кинетические параметры процесса ТФЭ. Коэффициент поверхностной диффузии  $D_s$  атомов германия на  $\text{Fe}_3\text{Si}$  составляет  $\sim 37.1 \exp(-1.93/k_B T) \text{ cm}^2/\text{s}$ .

## Благодарности

Авторы благодарят Красноярский региональный центр коллективного пользования ФИЦ КНЦ СО РАН за предоставленное оборудование.

## Финансирование работы

Работа выполнена в рамках научной тематики госзаказа Института физики им. Л.В. Киренского СО РАН.

## Конфликт интересов

Авторы заявляют об отсутствии конфликта интересов

## Список литературы

- [1] I. Žutić, J. Fabian, S.D. Sarma. Rev. Mod. Phys. **76**, 2, 323 (2004).
- [2] S. Bhatti, R. Sbiaa, A. Hirohata, H. Ohno, S. Fukami, S.N. Piramanayagam. Mater. Today **20**, 9, 530 (2017).
- [3] B. Jinnai, K. Watanabe, S. Fukami, H. Ohno. Appl. Phys. Lett. **116**, 16, 160501 (2020).
- [4] B. Jenichen, J. Herfort, U. Jahn, A. Trampert, H. Riechert. Thin Solid Films **556**, 120 (2014).
- [5] A.V. Lukyanenko, L.V. Shanidze, M.V. Rautskii, I.A. Yakovlev, A.L. Sukhachev, K.Yu. Maksimova, A.Yu. Goikhman, N.V. Volkov, A.S. Tarasov. Bull. RAS: Phys. **88**, Suppl. 1, S42 (2024).]
- [6] K. Hamaya, Y. Fujita, M. Yamada, M. Kawano, S. Yamada, K. Sawano. J. Phys. D: Appl. Phys. **51**, 39, 393001 (2018).

- [7] A. Yamada, M. Yamada, T. Shiihara, M. Ikawa, S. Yamada, K. Hamaya. *J. Appl. Phys.* **129**, *1*, 013901 (2021).
- [8] S. Ikegawa, F.B. Mancoff, J. Janesky, S. Aggarwal. *IEEE Trans. ED* **67**, *4*, 1407 (2020).
- [9] M.A. Khan, J. Sun, B. Li, A. Przybysz, J. Kosel. *Eng. Res. Express* **3**, *2*, 022005 (2021).
- [10] P. Zhou, A.J. Edwards, F.B. Mancoff, S. Aggarwal, S.K. Heinrich-Barna, J.S. Friedman. *Commun. Eng.* **4**, *1*, 142 (2025).
- [11] G. Hoffmann, J. Herfort, M. Ramsteiner. *Phys. Rev. Mater.* **3**, *7*, 074402 (2019).
- [12] Y.B. Xu, S.S.A. Hassan, P.K.J. Wong, J. Wu, J.S. Claydon, Y.X. Lu, C.D. Damsgaard, J.B. Hansen, C.S. Jacobsen, Y. Zhai, G. van der Laan, R. Feidenhans, S.N. Holmes. *IEEE Trans. Magn.* **44**, *11*, 2959 (2008).
- [13] А.Б. Грановский, В.Н. Прудников, А.П. Казаков, А.П. Жуков, И.С. Дубенко. *ЖЭТФ* **142**, *5*, 916 (2012). [A.B. Granovskii, V.N. Prudnikov, A.P. Kazakov, A.P. Zhukov, I.S. Dubenko. *JETP* **115**, *5*, 805 (2012).]
- [14] T.J. Zega, A.T. Hanbicki, S.C. Erwin, I. Žutić, G. Kioseoglou, C.H. Li, B.T. Jonker, R.M. Stroud. *Phys. Rev. Lett.* **96**, *19*, 196101 (2006).
- [15] W.A. Hines, A.H. Menotti, J.I. Budnick, T.J. Burch, T. Litrenta, V. Niculescu, K. Raj. *Phys. Rev. B* **13**, *9*, 4060 (1976).
- [16] S. Gaucher, B. Jenichen, J. Kalt, U. Jahn, A. Trampert, J. Herfort. *Appl. Phys. Lett.* **110**, *10*, 102103 (2017).
- [17] S. Yamada, K. Tanikawa, M. Miyao, K. Hamaya. *Crystal Growth & Design* **12**, *10*, 4703 (2012).
- [18] A.S. Tarasov, I.A. Tarasov, I.A. Yakovlev, M.V. Rautskii, I.A. Bondarev, A.V. Lukyanenko, M.S. Platunov, M.N. Volochnyayev, D.D. Efimov, A.Yu. Goikhman, B.A. Belyaev, F.A. Baron, L.V. Shanidze, M. Farle, S.N. Varnakov, S.G. Ovchinnikov, N.V. Volkov. *Nanomater.* **12**, *1*, 131 (2022).
- [19] A.S. Tarasov, A.V. Lukyanenko, I.A. Yakovlev, I.A. Tarasov, I.A. Bondarev, A.L. Sukhachev, L.V. Shanidze, D.A. Smolyakov, S.N. Varnakov, S.G. Ovchinnikov, N.V. Volkov. *Bull. RAS: Phys.* **87**, Suppl. *1*, S133 (2023).
- [20] M. Yamada, S. Kusumoto, A. Yamada, K. Sawano, K. Hamaya. *Mater. Sci. Semicond. Process.* **171**, 107987 (2024).
- [21] S. Sakai, M. Kawano, M. Ikawa, H. Sato, S. Yamada, K. Hamaya. *Semicond. Sci. Technol.* **32**, *9*, 094005 (2017).
- [22] C.J. Palmstrøm. *Prog. Cryst. Growth Charact. Mater.* **62**, *2*, 371 (2016).
- [23] A.S. Tarasov, I.A. Bondarev, M.V. Rautskii, A.V. Lukyanenko, I.A. Tarasov, S.N. Varnakov, S.G. Ovchinnikov, N.V. Volkov. *J. Surf. Investigig: X-ray, Synchrotron & Neutron Techniques* **12**, *4*, 633 (2018).
- [24] S. Yamada, K. Tanikawa, M. Miyao, K. Hamaya. *Crystal Growth & Design* **12**, *10*, 4703 (2012).
- [25] H.J. Kim, Z.M. Zhao, J. Liu, V. Ozolins, J.Y. Chang, Y.H. Xie. *J. Appl. Phys.* **95**, *11*, 6065 (2004).
- [26] A.E. Dolbak, B.Z. Olshanetsky. *Central Eur. J. Phys.* **4**, *3*, 310 (2006).
- [27] И.А. Яковлев, С.Н. Варнаков, Б.А. Беляев, С.М. Жарков, М.С. Молохеев, И.А. Тарасов, С.Г. Овчинников. Письма в *ЖЭТФ* **99**, *9*, 610 (2014). [I.A. Yakovlev, S.N. Varnakov, B.A. Belyaev, S.M. Zharkov, M.S. Molokeev, I.A. Tarasov, S.G. Ovchinnikov. *JETP Lett.* **99**, *9*, 527 (2014).]
- [28] P. Klapetek, D. Nečas, C. Anderson. *Gwyddion user guide*. Czech Metrology Institute (2004–2007, 2009).
- [29] T.J. Collins. *Biotechniques* **43**, Suppl. *1*, S25 (2007).
- [30] S. Hu, P.C. McIntyre. *J. Appl. Phys.* **111**, *4*, 044908 (2012).
- [31] A.G. Naumovets, Y.S. Vedula. *Surf. Sci. Rep.* **4**, *7–8*, 365 (1985).
- [32] G. Antczak, G. Ehrlich. *Surface Diffusion: Metals, Metal Atoms, and Clusters*. Cambridge University Press (2010). Pp. 45–80.
- [33] H.P. Bonze. *Critical Rev. Solid State. Mater. Sci.* **6**, *2*, 171 (1976).

Редактор Е.В. Толстякова