

08

## Исследования магнитооптических свойств тонких слоев Fe *in situ* методами

© С.А. Лященко,<sup>1,2</sup> И.А. Тарасов,<sup>1,2</sup> С.Н. Варнаков,<sup>1,2</sup> Д.В. Шевцов,<sup>1,2</sup> В.А. Швец,<sup>3,4</sup> В.Н. Заблуда,<sup>1</sup>  
С.Г. Овчинников,<sup>1,2</sup> Н.Н. Косырев,<sup>1,2</sup> Г.В. Бондаренко,<sup>1</sup> С.В. Рыхлицкий<sup>3</sup>

<sup>1</sup> Институт физики им. Л.В. Киренского СО РАН,  
660036, Красноярск, Россия

<sup>2</sup> Сибирский государственный аэрокосмический университет им. акад. М.Ф. Решетнева,  
660014, Красноярск, Россия

<sup>3</sup> Институт физики полупроводников им. А.В. Ржанова СО РАН,  
630090, Новосибирск, Россия

<sup>4</sup> Новосибирский государственный университет,  
630090, Новосибирск, Россия  
e-mail: lsa@iph.krasn.ru

(Поступило в Редакцию 26 октября 2012 г.)

Методом термического испарения в сверхвысоком вакууме получена тонкая поликристаллическая пленка Fe на монокристаллической подложке Si с естественным оксидом SiO<sub>2</sub>. Исследованы магнитооптические свойства полученной структуры *in situ* методами спектральной эллипсометрии. Найдены значения коэрцитивной силы пленки Fe, построены петля перемагничивания и энергетическая зависимость экваториального эффекта Керра. Показана эффективность магнитоэллипсометрии для *in situ* анализа геометрических и магнитооптических свойств тонких слоев ферромагнетиков.

### Введение

Исследования процессов формирования гетероструктур на основе железа и кремния обусловлены актуальностью создания магнитных полупроводников, используя развитую кремниевую технологию. Для получения качественной гетероструктуры необходимо иметь информацию обо всех возможных химических взаимодействиях на границе раздела материалов. На сегодняшний день проведено большое количество исследований для системы Fe/Si, построены различные варианты фазовых диаграмм для субнанометровых толщин [1–3]. Однако по-прежнему малоизучены магнитные и магнитооптические свойства соединений Si и Fe непосредственно в процессе их формирования, так как имеются значительные технологические трудности по созданию магнитооптической системы непосредственно в сверхвысоковакуумной ростовой камере. В работе [4] нами было показано, что одноволновая эллипсометрия при незначительной модификации схемы измерения позволяет проводить также магнитооптические исследования.

Стандартные методы отражательной одноволновой и спектральной эллипсометрии позволяют с высокой точностью определять оптические свойства различных поверхностей [5]. Также данные методы контроля хорошо зарекомендовали себя в процессе синтеза наноструктур, где требуется непрерывный неразрушающий мониторинг процессов формирования [5–9].

Целью настоящей работы было проведение исследований оптических, магнитооптических и магнитных свойств тонкой пленки Fe на поверхности SiO<sub>2</sub>/Si(100) до, во время и после напыления структу-

ры непосредственно в созданном коллективом авторов измерительно-ростовом комплексе [10].

### Техника эксперимента

Образец представлял собой подложку монокристаллического кремния с буферным слоем SiO<sub>2</sub>. Подробное описание процесса химической подготовки подложки кремния дано в работе [11]. Базовый вакуум в технологической камере составлял 10<sup>-7</sup> Па. До напыления пленки железа было проведено спектральное *in situ* эллипсометрическое исследование подложки для определения толщины диоксида кремния. Спектральный диапазон эллипсометрических измерений составлял 360–900 nm. Измерения проводились в 4-зонном режиме [12] без магнитного поля. Угол падения света во всех *in situ* измерениях был фиксированным и составлял 56°, для *ex situ* измерений 70°.

Далее была получена пленка железа с контролем параметров ее роста. Железо испарялось из молекулярного источника с тиглем из нитрида бора. Процесс осаждения металла контролировался одноволновой эллипсометрией на длине волны зондирующего пучка 500 nm и одновременно осуществлялся расчет эффективной толщины растущей пленки железа на основе численного метода Ньютона [13]. Найденная скорость осаждения железа составляла ~ 0.14 nm/min. Температура подложки в процессе осаждения железа составляла около 250°C.

После напыления и охлаждения образца до комнатной температуры, были проведены *in situ* спектральные эллипсометрические измерения без магнитного поля в

диапазоне 360–900 nm с целью определить структурные свойства полученного слоя Fe.

Одноволновые ( $\lambda = 500$  nm) эллипсометрические измерения проведены с изменением напряженности магнитного поля в диапазоне насыщения образца  $\pm 430$  Oe. Шаг изменения напряженности магнитного поля составлял 12 Oe.

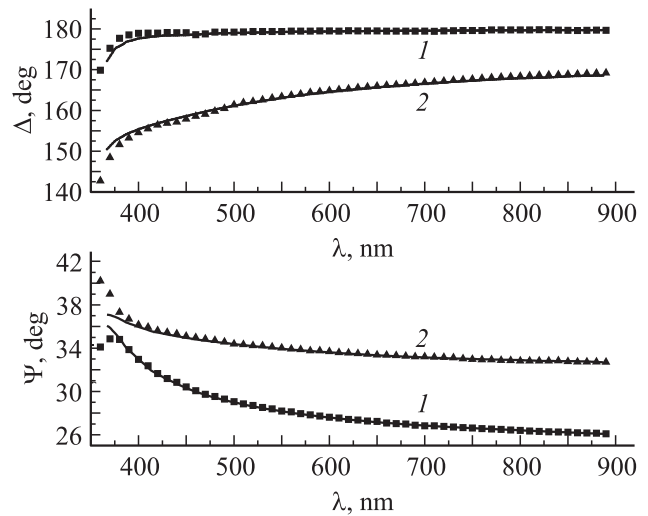
Магнитооптические измерения проводились на основе экваториального эффекта Керра (ЭЭК) с использованием быстродействующего спектрального эллипсометра Эллипс-1891 и модулированного внешнего магнитного поля в зависимости от энергии падающего излучения в диапазоне  $\sim 1.4$ – $3.2$  eV для *in situ* и  $\sim 1.4$ – $3.8$  eV для *ex situ* методов. Получение данных было основано на измерении изменения амплитудного эллипсометрического параметра  $\Psi$  при перемагничивании образца в полях насыщения на каждом шаге по длине волны выбранного спектрального диапазона. Величина приложенного магнитного поля при перемагничивании образца до насыщения составляла  $\pm 430$  Oe.

## Результаты и обсуждение

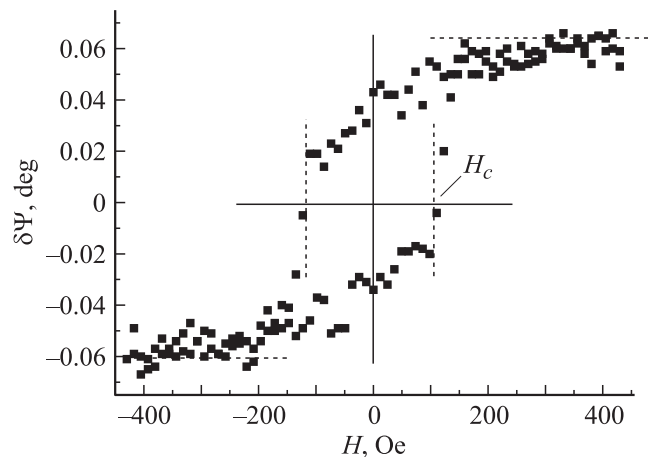
Спектральные зависимости эллипсометрических углов  $\Psi$  и  $\Delta$ , измеренные до напыления железа, очень близки по абсолютным значениям к чистому кремнию с некоторым отклонением по фазовому параметру  $\Delta$ . Это свидетельствует о наличии достаточно тонкого слоя прозрачного естественного диоксида кремния на полированной поверхности подложки. Так как слой оксида не имеет достаточной эффективной толщины для определения пористости, при поиске его параметров была построена оптическая модель сплошного однородного слоя  $\text{SiO}_2$  и полубесконечной среды Si с резкими границами разделов. Искомым параметром при подгонке являлась толщина оксидного слоя, которая составила  $0.4 \pm 0.1$  nm. На рис. 1 приведены измеренные спектральные зависимости  $\Psi$  и  $\Delta$  для образца до напыления Fe и рассчитанные спектры по оптимизированной модели. Расхождения между экспериментальными и рассчитанными зависимостями в коротковолновой области спектра обусловлены слабой интенсивностью полезного сигнала.

В процессе контроля толщины и оптических свойств растущей пленки Fe одноволновой эллипсометрией было найдено итоговое значение ее толщины  $12.5 \pm 0.1$  nm. Для проверки результатов расчета полученная структура была исследована *ex situ* методом рентгеноспектрального флуоресцентного анализа (РСФА). Толщина пленки железа, полученная с помощью метода РСФА, составила  $12.4 \pm 0.6$  nm. Таким образом, можно говорить о том, что с учетом погрешностей измерений методами РСФА и одноволновой эллипсометрии, значения толщин Fe совпадают.

Как и для подложки кремния с буферным слоем диоксида кремния, по полученным данным была прове-



**Рис. 1.** Спектрограммы экспериментальных и рассчитанных эллипсометрических углов до (1) и после (2) напыления железа: сплошные линии — теория, квадраты и треугольники — измеренные данные до и после напыления соответственно.



**Рис. 2.** Зависимость изменения эллипсометрического параметра  $\Psi$  от величины магнитного поля для структуры Fe/SiO<sub>2</sub>/Si(100).

дена подгонка параметров оптической модели с резкими границами разделов „однородная сплошная пленка Fe—однородная сплошная пленка SiO<sub>2</sub>—полубесконечная среда сплошного Si“ [14] и найдены структурные параметры образца после напыления: толщина двуокиси кремния по-прежнему составила  $0.4 \pm 0.1$  nm; эффективная толщина пленки железа составила  $12.4 \pm 0.1$  nm. Подгонка толщин во всех спектральных эллипсометрических измерениях проводилась симплекс-методом Нелдера—Мида. Результаты измерений спектральных зависимостей эллипсометрических углов после напыления пленки железа представлены также на рис. 1 с расчетными данными по оптимизированной модели.

Результаты измерений петли перемагничивания на основе магнитооптического эффекта Керра представлены на рис. 2. Длина волны зондирующего излучения в этом

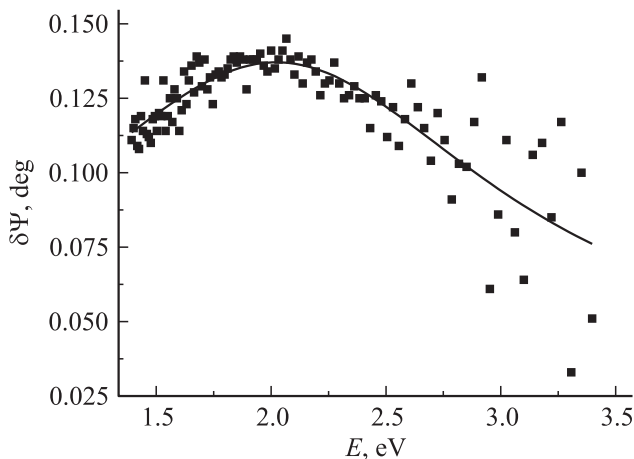
случае была 500 nm. Анализ полученных данных позволяет сделать выводы о некоторых магнитных свойствах полученной структуры, в частности в нашей геометрии эксперимента величина коэрцитивной силы пленки Fe составила  $120 \pm 6$  Oe, а поле насыщения  $\sim 300$  Oe.

Найденное значение коэрцитивной силы соответствует литературным данным [15,16] для соответствующих толщин в случае однородной пленки, но не островковой структуры [17]. Так, согласно предположению в работе [18], увеличение пористости слоя приводит к значительному росту коэрцитивной силы только для ферромагнитного слоя толщины более 100 nm. При этом для однородных слоев Fe с толщиной немного более 8 nm, когда завершена коалесценция островков Fe на поверхности в сплошную пленку при температуре около 250°C, величина коэрцитивной силы слабо меняется с дальнейшим ростом толщины и сохраняется в пределах 100–200 Oe [19], что подтверждается в настоящей работе.

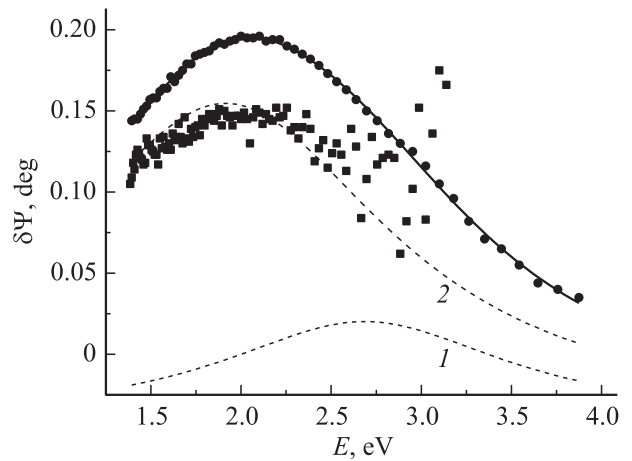
На рис. 3 представлены результаты *in situ* измерения энергетической зависимости ЭЭК в диапазоне 1.4–3.4 eV. На графике отчетливо виден пик в области  $2.04 \pm 0.03$  eV. Однако из-за слабой интенсивности сигнала в коротковолновой области спектра *in situ* магнитоэллипсометра, в полученных данных имеется значительный разброс значений, что затрудняет их анализ. Поэтому были проведены дополнительные измерения спектра ЭЭК на *ex situ* магнитоэллипсометре в диапазоне 1.4–3.8 eV.

На рис. 4 представлены все результаты измерений спектра ЭЭК. Различия в интенсивностях пиков для двух спектров обусловлены различными углами падения света для *in situ* и *ex situ* измерений. Полученная энергетическая зависимость ЭЭК качественно совпадает с результатами исследований, приведенных в работе [20] для объемного железа.

На энергетическую зависимость магнитооптического эффекта Керра влияет ряд факторов, в том числе и



**Рис. 3.** Энергетическая зависимость магнитооптического эффекта Керра, измеренная для структуры Fe/SiO<sub>2</sub>/Si(100) методом *in situ*.



**Рис. 4.** Энергетическая зависимость магнитооптического эффекта Керра, измеренная для структуры Fe/SiO<sub>2</sub>/Si(100) методом *ex situ* (окружности) и методом *in situ* (квадраты). Штрихом обозначено разложение спектра на гауссовы пики. Сплошной линией обозначена сумма найденных гауссовых пиков.

плотность электронных состояний атомов железа. В работе [21] были проведены исследования поликристаллической 10 nm пленки Fe методом фотоэмиссионной спектроскопии, полученные данные свидетельствуют о наличии аналогичного пика плотности электронных состояний на 2 eV.

После разложения полученного нами пика на рис. 4, на два гауссиана с максимумами в  $1.92 \pm 0.10$  и  $2.69 \pm 0.19$  eV можно их сравнить с результатами расчетов плотности состояний железа [22,23] и увидеть, что они образованы  $t_{2g}$ -состояниями, 1 — для электронов со спином вверх и 2 — со спином вниз. Расчеты [22] температурно-зависящей зонной структуры выполнены методом LDA+DMFT с учетом электронных корреляций. Расчеты [23] проведены в рамках спин-зависимых методов теории функционала плотности. Следует отметить, что найденное обменное расщепление зон со спином вверх и вниз величиной  $0.8 \pm 0.3$  eV близко к значениям, полученным методом обратной фотоэмиссионной спектроскопии в работах [24,25].

## Заключение

Суммируя результаты настоящей работы, можно отметить, что развитые методы одновременного измерения эллипсометрических и магнитооптических параметров (названных нами „магнитоэллипсометрия“) непосредственно в камере роста в условиях сверхвысокого вакуума позволяют в одном цикле экспериментов исследовать как структуру пленок толщиной порядка 1 nm, так и их магнитные свойства. Обработка спектров эффекта Керра позволила получить информацию о спин-зависящей плотности электронных состояний, согласующуюся с

данными теоретических расчетов и результатов предыдущих измерений *ex situ*.

Работа выполнена при финансовой поддержке программы ОФН РАН № 2.4, программы президиума РАН № 24.34, интеграционного проекта СО РАН — ДВО РАН № 85, гранта поддержки ведущей научной школы (проект НШ-1044.2012.2), „УМ.Н.И.К.“ (Красноярск, Россия) и при поддержке Министерства образования и науки Российской Федерации, соглашения № 14.132.21.1709, соглашение № 14.B37.21.1276 и государственный контракт № 14.513.11.0016.

## Список литературы

- [1] Диаграмма состояния двойных металлических систем. Справочник: В 3 т.: Т. 2 / Под общ. ред. Н.П. Лякишева. М.: Машиностроение, 1997. 1024 с.
- [2] *Fanciulli M.* // *Thin. Sol. Films.* 1996. Vol. 275. P. 8–11.
- [3] *Гомоюнова М.В., Малыгин Д.Е., Пронин И.И.* // ФТТ. 2006. Т. 48. С. 1898–1905.
- [4] *Косырев Н.Н., Овчинников С.Г.* // Письма в ЖЭТФ. 2008. Т. 88. № 2. С. 152–154.
- [5] *Fujiwara H.* *Spectroscopic Ellipsometry. Principles and Application.* Wiley, 2007. 369 p.
- [6] *Варнаков С.Н., Комогоорцев С.В., Bartolome J., Sese J., Паршин А.С., Косырев Н.Н.* // Физика металлов и металловедение. 2008. Т. 106. № 1. С. 54–58.
- [7] *Варнаков С.Н., Лепешев А.А., Овчинников С.Г.* и др. // ПТЭ. 2004. № 6. С. 125–129.
- [8] *Duncan W.M., Henck S.A., Kuehne J.W., Loewenstein L.M., Maung S.* // *J. Vac. Sci. Technol. B.* 1994. Vol. 12. № 4. P. 27–79.
- [9] *Aspnes D.E.* // *Thin. Sol. Films.* 1993. Vol. 233. P. 1–8.
- [10] *Рыхлицкий С.В., Швец В.А., Спесивцев Е.В., Прокопьев В.Ю., Овчинников С.Г., Заблуда В.Н., Косырев Н.Н., Варнаков С.Н., Шевцов Д.В.* // ПТЭ. 2012. № 2. С. 165–166.
- [11] *Volkov N.V., Tarasov A.S., Eremin E.V., Varnakov S.N., Ovchinnikov S.G., Zharkov S.M.* // *J. Appl. Phys.* 2011. Vol. 109. P. 123 924.
- [12] *Швец В.А., Спесивцев Е.В., Рыхлицкий С.В.* // Опт. и спектр. 2004. Т. 97. № 3. С. 514–525.
- [13] *Тарасов И.А., Косырев Н.Н., Варнаков С.Н., Овчинников С.Г., Жарков С.М., Швец В.А., Бондаренко С.Г., Терещенко О.Е.* // ЖТФ. 2012. Т. 82. Вып. 9. С. 44–48.
- [14] *Azzam R.M.A., Bashara N.M.* *Ellipsometry and polarized light.* N.Y.: North Holland Publishing Company, 1977. 583 p.
- [15] *Hoffman H.* // *Zs. Phys.* 1961. Vol. 165. P. 261.
- [16] *Stunkel D.* // *Zs. Phys.* 1963. Vol. 176. P. 207.
- [17] *Артемов Е.М., Комалов А.С.* // ЖТФ. 2008. Т. 78. Вып. 10. С. 98–99.
- [18] *Балашев В.В., Коробцов В.В., Писаренко Т.А., Чеботкевич Л.А.* // ЖТФ. 2011. Т. 81. Вып. 10. С. 122–128.
- [19] *Ваганов А.Б., Завьялов В.В.* // ЖЭТФ. 1974. Т. 67. С. 2167–2179.
- [20] *Krinchik G.S., Artem'ev V.A.* // *JETP.* 1968. Vol. 26. P. 1080–1085.
- [21] *Fausto Sirotti, Maurizio De Santis, Giorgio Rossi* // *Phys. Rev. B.* 1993. Vol. 48. P. 8299–8306.
- [22] *Lichtenstein A.I., Katsnelson M.I., Kotliar G.* // *Phys. Rev. Lett.* 2001. Vol. 87. P. 067–205.
- [23] *Zeller R.* *Spin-Polarized DFT Calculations and Magnetism.* John von Neumann Institute for Computing, 2006. 27 p.
- [24] *Himpfel F.J.* // *Phys. Rev. Lett.* 1991. Vol. 67. P. 2363–2366.
- [25] *Eastman D.E., Himpfel F.J., Knapp J.A.* // *Phys. Rev. Lett.* 1980. Vol. 44. P. 95–98.