

12,05,13

Формирование сверхтонких магнитных пленок железа на вицинальной поверхности кремния

© М.В. Гомоюнова¹, Г.С. Гребенюк¹, И.И. Пронин¹, С.М. Соловьев¹,
Д.Е. Марченко², Д.В. Вялых³

¹ Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе РАН,
Санкт-Петербург, Россия

² HZB BESSY,
Berlin, Germany

³ Institut für Festkörperphysik, Technische Universität Dresden,
Dresden, Germany

E-mail: Igor.Pronin@mail.ioffe.ru

(Поступила в Редакцию 5 июля 2010 г.)

Изучены фазовый состав, электронное строение и магнитные свойства сверхтонких слоев железа и силицидов железа, образующихся при нанесении 1–25 Å Fe на атомно-чистую вицинальную поверхность Si(100) при комнатной температуре. Исследование проведено методами фотоэлектронной спектроскопии высокого энергетического разрешения с использованием синхротронного излучения и магнитного линейного дихроизма в фотоэмиссии Fe 3р-электронов. Показано, что последовательность формирования фаз (твердый раствор Fe–Si, силицид Fe₃Si, пленка железа) такая же, как и в случае нанесения железа на сингулярную грань Si(100), однако в данном случае заметно усилена сегрегация кремния на пленке железа. Установлено, что ферромагнитное упорядочение пленок в плоскости поверхности образца носит пороговый характер и наступает после нанесения 7 Å Fe на стадии роста силицида Fe₃Si. Дальнейшее напыление приводит к увеличению остаточной намагниченности пленки, достигающей насыщения при дозах напыления около 20 Å. При этом пленка обладает магнитной анизотропией, и ее ось легкого намагничивания ориентирована вдоль ступеней подложки.

Работа выполнена при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (проект № 10-02-00632) и Российско-Германской лаборатории в HZB BESSY.

1. Введение

Низкоразмерные системы обладают необычными магнитными свойствами, изучение которых представляет большой научный и практический интерес [1]. Так, например, из-за магнитного дипольного взаимодействия сверхтонкие пленки металлов в зависимости от толщины могут намагничиваться как вдоль, так и перпендикулярно поверхности [2–4]. Оказалось также, что островковые пленки металлов группы железа, образующиеся на поверхности диэлектриков, могут обладать суперпарамагнитными свойствами. При этом переход в ферромагнитную фазу происходит вблизи порога перколяции островков [5,6]. Наконец, исследования наноструктур железа, сформированных на вицинальной (ступенчатой) поверхности немагнитных металлов (W(100) [7], Cu(111) [8], Au(111) [9] и др.), показали, что для них характерна одноосная магнитная анизотропия, индуцированная ступеньками. Причем ось легкого намагничивания может быть ориентирована как параллельно, так и перпендикулярно ступеням подложки.

В отличие от рассмотренных систем магнитные свойства сверхтонких слоев железа, формирующихся на вицинальных поверхностях кремния, изучены в значительно меньшей степени, а имеющиеся работы выполнены преимущественно для больших покрытий, эффектив-

ная толщина которых составляет несколько нанометров Fe [10,11]. Особенностью системы Fe/Si является сильное химическое взаимодействие между атомами железа и кремния в области интерфейса, которое может приводить к формированию как стабильных, так и метастабильных фаз силицидов железа [12]. Образование этих фаз очень чувствительно к кристаллическому строению подложки, ее дефектам, а также к условиям проведения эксперимента. Поэтому изучение магнитных свойств сверхтонких слоев железа на кремнии необходимо сопровождать одновременным анализом их элементного и фазового состава. Такой подход уже был использован нами для исследования пленок, формирующихся на сингулярных (атомно-гладких) поверхностях Si(100) 2 × 1 и Si(111) 7 × 7 [13,14]. Применение его к наноструктурам железа, самоорганизующимся на вицинальной поверхности кремния Si(111), показало, что ступенчатость вицинальной поверхности может оказывать очень существенное влияние на магнитные свойства формирующихся покрытий [15].

В настоящей работе описываются результаты исследования, проведенного на другой вицинальной поверхности кремния — Si(100). Целью работы было установление взаимосвязи электронного строения, фазового состава и магнитных свойств пленок железа на ранних стадиях их роста.

2. Техника эксперимента

Основные эксперименты проводились в Российско-Германской лаборатории на синхротроне HZB BESSY. Исследуемые образцы изготавливались из пластин монокристаллического кремния КЭФ-1, поверхность которых имела отклонение от базовой плоскости (100), равное 4° . Очистка поверхности образцов проводилась стандартным способом — обработкой *ex situ* по методу Шираки с последующим отжигом в сверхвысоком вакууме [15]. При этом после длительного обезгаживания при 600°C они сначала нагревались до температуры 1200°C , затем быстро охлаждались до 900°C , а далее медленно остывали (со скоростью менее градуса в секунду) до комнатной температуры. Такая процедура обеспечивала получение атомно-чистой поверхности, представлявшей собой систему регулярных террас $\text{Si}(100)2 \times 1$ шириной около 10 nm , разделенных эшелонами ступеней. Атомная структура поверхности контролировалась методом дифракции медленных электронов. Для проведения контрольных экспериментов применялись также подложки с сингулярной поверхностью $\text{Si}(100)2 \times 1$, разориентация которых относительно плоскости (100) не превышала 0.1° . Железо на поверхность образцов наносилось после их остывания до комнатной температуры. Скорость напыления составляла $\sim 0.3 \text{ \AA}/\text{min}$. Эффективная толщина пленок железа варьировалась в диапазоне $1\text{--}25 \text{ \AA}$.

Основным методом анализа электронного строения поверхностных слоев являлась фотоэлектронная спектроскопия высокого энергетического разрешения с использованием синхротронного излучения. Энергия фотонов, как правило, составляла 135 eV , а энергетическое разрешение спектрометра (с учетом монохроматора) — 100 meV . Фазовый состав формирующихся пленок определялся на основе анализа спектров валентных и остовных $\text{Si } 2p$ -электронов, обладающих высокой чувствительностью к химическому состоянию атомов кремния и их локальному окружению.

Изучение магнитных свойств пленок проводилось с помощью поверхностно-чувствительного метода магнитного линейного дихроизма в фотоэмиссии $\text{Fe } 3p$ -электронов [16–19]. Эффект состоит в том, что при регистрации электронов в узком телесном угле вдоль нормали к поверхности образца энергетическое положение и форма $\text{Fe } 3p$ -линии оказываются зависящими от направления намагниченности пленки железа в плоскости поверхности. Для намагничивания образцов мы использовали пару катушек Гельмгольца, помещенных внутри вакуумной камеры. Пропусканием через них импульсов тока создавалось магнитное поле напряженностью 10^3 Oe , достаточное для насыщения намагниченности образцов. Для получения сведений о возможной магнитной анизотропии сверхтонких пленок железа, стимулированной ступенями подложки, были проведены две идентичные серии экспериментов с одинаковыми образцами, по-разному ориентированными в магнитном

поле. В первой из них образцы намагничивались вдоль ступеней подложки (в направлении $\langle 110 \rangle$), а в другой — в том же кристаллографическом направлении, что перпендикулярно ступеням. В каждом из опытов спектры $\text{Fe } 3p$ -электронов измерялись в режиме остаточной намагниченности для двух противоположных ориентаций магнитного поля. Эксперименты проводились при комнатной температуре в вакууме 10^{-10} mbar .

3. Результаты и их обсуждение

Типичные спектры $\text{Si } 2p$ -электронов, измеренные для различных доз напыления железа на вицинальную поверхность $\text{Si}(100)$, показаны на рис. 1, *b* точками. Для наглядности представления спектры приведены без фона и нормированы на максимумы интенсивности. На рис. 1, *a* с целью выявления роли ступеней подложки в формировании пленок железа представлены аналогичные данные для сингулярной поверхности $\text{Si}(100)2 \times 1$, ширина террас на которой была на порядок больше, чем для вицинальной грани. Однако, как видно из рис. 1, на ранней стадии роста пленки железа (до $\sim 7 \text{ \AA}$) этот фактор не оказывает заметного влияния на динамику изменения спектров с покрытием. Отсюда можно сделать вывод о том, что начальные стадии формирования интерфейса Fe/Si протекают сходным образом на обеих подложках.

Рис. 1 демонстрирует также результаты разложения измеренных спектров на составляющие, которые были получены с помощью стандартной процедуры, основанной на использовании функций Фойгта [20]. Разные моды спектров по-разному заштрихованы. Видно, что основной вклад в спектры, измеренные после нанесения на поверхность кремния 2.5 \AA Fe , вносят компоненты *B* и *A*. Они соответствуют атомам кремния, находящимся в кремниевой подложке (мода *B*) и в твердом растворе Fe-Si (мода *A*), образующемся на поверхности обоих образцов. Аргументы в пользу такой идентификации мод приведены в работе [12].

Дальнейшее увеличение дозы напыления до $\sim 6 \text{ \AA Fe}$ приводит к замене моды *A* модой *C*, которая соответствует атомам кремния в силициде железа Fe_3Si . Вывод о трансформации твердого раствора кремния в железе в силицид Fe_3Si подтверждается характерным изменением спектра фотовозбужденных валентных электронов, в которых вблизи уровня Ферми возникает широкий максимум с почти плоской вершиной [12,21].

Следует также отметить, что появление в спектре $\text{Si } 2p$ -электронов моды *C* сопровождается возникновением еще одной компоненты — S_C , которая является модой атомов кремния, сегрегированных на поверхности образца [12,13]. Относительная интенсивность этой моды усиливается при дальнейшем напылении Fe , когда на слое Fe_3Si начинает расти пленка железа. Причем в случае вицинальной поверхности $\text{Si}(100)$ при дозе напыления 8 \AA Fe эта мода становится доминирующей в $\text{Si } 2p$ -спектре.

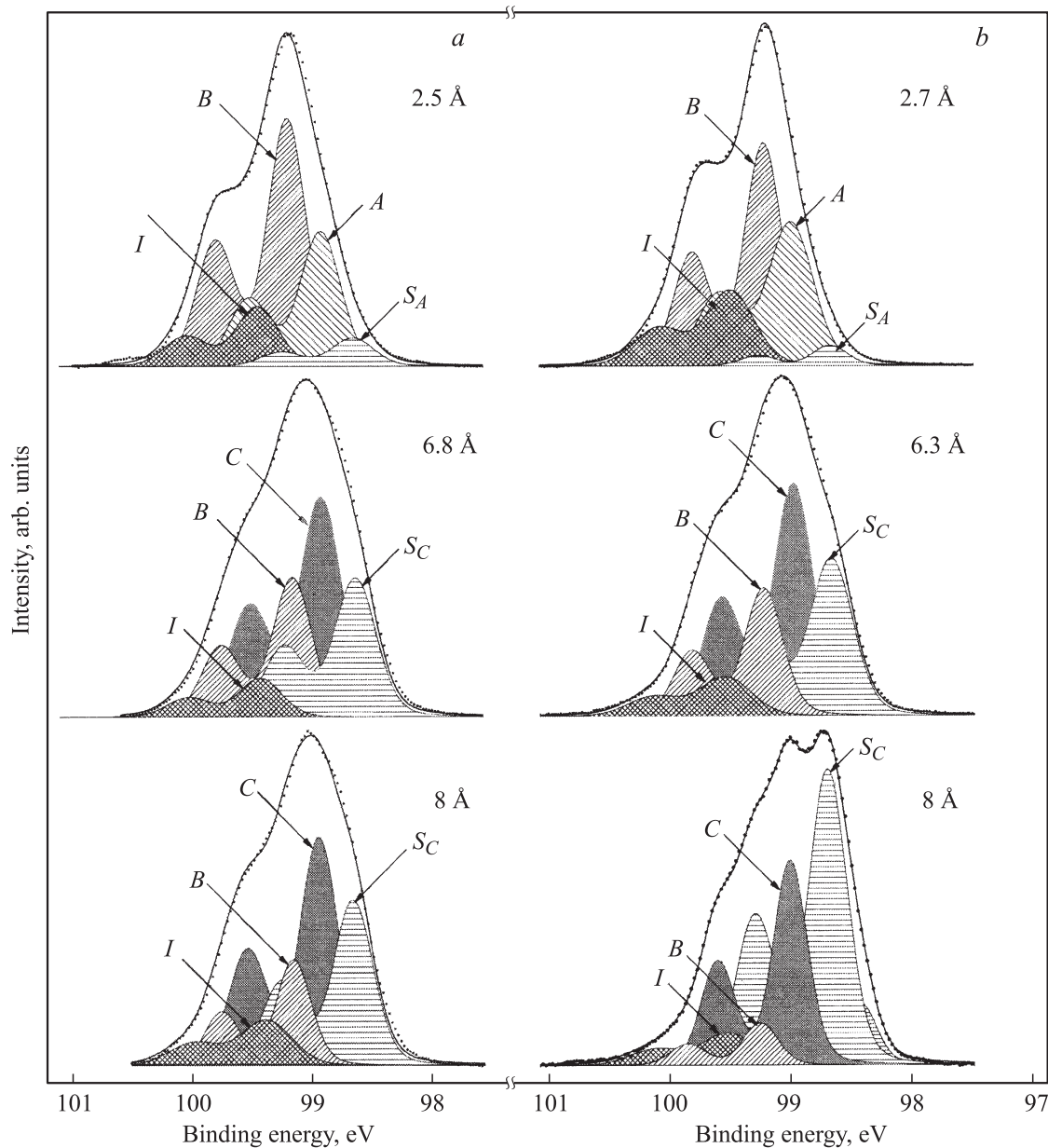


Рис. 1. Экспериментальные спектры фотовозбужденных Si $2p$ -электронов, полученные для различных доз напыления железа на кремний, и результаты разложения спектров на составляющие. *a* — сингулярная поверхность Si(100) 2×1 , *b* — вициальная поверхность Si(100).

Таким образом, на начальной стадии роста пленок, формирующихся на вициальной и сингулярной поверхностях Si(100), фазовый состав их поверхностных слоев практически одинаков. Образованию пленки чистого железа в обоих случаях предшествует формирование твердого раствора кремния в железе и богатого железом силицида Fe_3Si . Наблюдающиеся различия связаны главным образом с усилением сегрегации кремния на пленке железа, растущей на ступенчатой поверхности вициальной грани.

Обратимся теперь к магнитным свойствам формирующихся пленок. Результаты, полученные для вици-

альной поверхности кремния, иллюстрирует рис. 2. На рис. 2, *a* приведены Fe $3p$ -спектры, измеренные после нанесения на поверхность образца возрастающих доз железа. Видно, что спектры $I_{\uparrow}(E)$ и $I_{\downarrow}(E)$, зарегистрированные при двух противоположных направлениях намагниченности образца, на ранних стадиях напыления совпадают, так что эффект магнитного линейного дихроизма не наблюдается. Спектры становятся чувствительными к направлению намагниченности образца после нанесения 7.5 \AA Fe. Это хорошо видно из сопоставления разностных кривых ($I_{\uparrow} - I_{\downarrow}$), показанных на рис. 2, *b*. Начиная с данного покрытия, на них

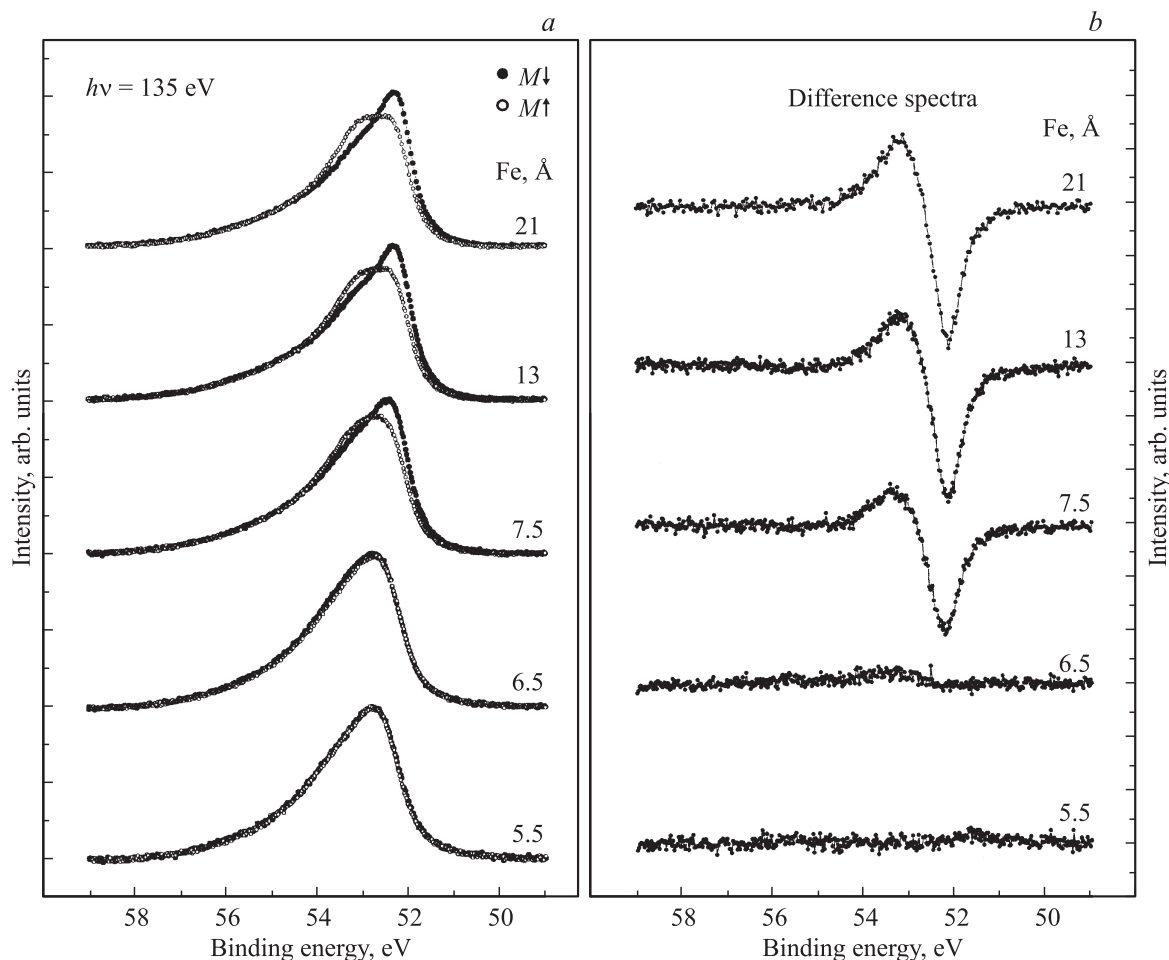


Рис. 2. Спектры $I_{\uparrow}(E)$ и $I_{\downarrow}(E)$ Fe $3p$ -электронов, измеренные после намагничивания образца в двух противоположных направлениях (M_{\uparrow} и M_{\downarrow}) в плоскости поверхности (а), и соответствующие им разностные кривые $I_{\uparrow} - I_{\downarrow}$ (b).

появляются четкие минимумы и максимумы, соответствующие подуровням мультиплета Fe $3p$ с магнитными квантовыми числами $m_j = \pm 3/2$. Количественно эффект магнитного линейного дихроизма характеризуют амплитудой магнитной асимметрии A , определяемой по формуле: $A = \{\max[S(E)] - \min[S(E)]\} \cdot 100\%$, где $S(E) = (I_{\uparrow} - I_{\downarrow}) / (I_{\uparrow} + I_{\downarrow})$. Амплитуда магнитной асимметрии является непосредственной мерой остаточной намагниченности образцов [18].

Зависимость амплитуды магнитной асимметрии от эффективной толщины слоя железа, нанесенного на вицинальную поверхность Si(100), иллюстрируется рис. 3. На нем приведены данные, полученные для образцов, намагниченных вдоль ступеней подложки (кривая 1) и перпендикулярно им (кривая 2). Видно, что обе зависимости во многом сходны, и ферромагнитное упорядочение пленок железа носит пороговый характер. Следует подчеркнуть, что аналогичное поведение размерной зависимости величины A наблюдалось и для сингулярной поверхности Si(100) 2×1 [13,14]. Учитывая, что использованный нами метод чувствителен лишь к намагниченности пленки вдоль поверхности образца, от-

меченный пороговый характер размерных зависимостей можно объяснить известным эффектом переориентации спина электронов от перпендикулярного поверхности

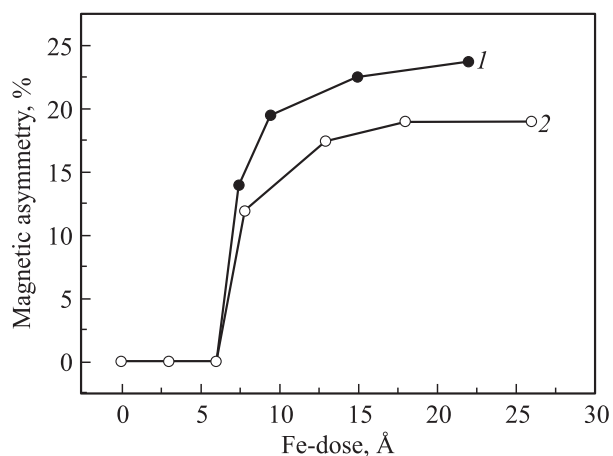


Рис. 3. Зависимости амплитуды магнитной асимметрии от дозы напыления железа, полученные при намагничивании образца вдоль ступеней подложки (1) и перпендикулярно им (2).

направления к параллельному ей, который обусловлен усилением роли магнитных дипольных взаимодействий с увеличением толщины пленки [2–4].

Обращает на себя внимание также заметный рост величины A в диапазоне покрытий 10–15 Å Fe (за отмеченным выше порогом ферромагнитного упорядочения). Эта закономерность может быть объяснена изменением химического состава растущей пленки. Действительно, если принять во внимание, что регистрируемые Fe $3p$ -электроны выходят из приповерхностного слоя образца толщиной менее 10 Å, то становится ясным, что в указанном диапазоне покрытий мы переходим от анализа магнитных свойств пленки силицида к анализу пленки железа, растущей на этом силициде. Причем в элементарной ячейке Fe₃Si для атомов Fe имеется два типа неэквивалентных мест, характеризующихся существенно разными магнитными моментами (1.2 и 2.3 μ_B) [22]. Поэтому средний магнитный момент атомов Fe в этом соединении оказывается заметно меньшим, чем у чистого железа, что и объясняет наблюдаемую закономерность.

Из данных, приведенных на рис. 3, также следует, что максимальные значения величины A , достигаемые для пленок железа при наибольших покрытиях, зависят от ориентации вектора напряженности магнитного поля относительно направления ступеней подложки. При этом намагниченность пленки в направлении вдоль ступеней оказывается примерно на 25% выше, чем в перпендикулярном направлении. Это свидетельствует о том, что пленкам железа, формирующиеся на вицинальной поверхности кремния, свойственна магнитная анизотропия. Эффект, по-видимому, обусловлен специфической морфологией пленок. На ранних стадиях их роста на поверхности кремния могут образовываться квазиодномерные структуры, вытянутые преимущественно вдоль ступеней подложки, что и приводит к появлению оси легкого намагничивания в данном направлении. Формирование сходных структур было недавно обнаружено нами при нанесении тонких слоев железа на вицинальную поверхность Si(111), модифицированную поверхностной фазой $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ -Ag [15].

4. Заключение

Таким образом, ступенчатость вицинальной поверхности Si(100) не оказывает сильного влияния на фазовый состав формирующегося интерфейса Fe/Si, а проявляется главным образом в усилении сегрегации кремния на поверхности образца. Кроме того, этот фактор влияет на морфологию пленки и приводит к появлению одноосной магнитной анизотропии в плоскости поверхности образца. Ферромагнитное упорядочение растущей пленки носит пороговый характер и наступает после нанесения 7 Å Fe на стадии образования силицида железа Fe₃Si. Дальнейшее напыление металла приводит к росту на

этом силициде пленки железа, намагниченность которой достигает насыщения при дозах напыления около 20 Å.

Список литературы

- [1] C.A.F. Vaz, J.A.C. Bland, G. Lauhoff. Rep. Prog. Phys. **71**, 056 501 (2008).
- [2] C. Liu, S.D. Bader. Phys. Rev. B **41**, 553 (1990).
- [3] Z.Q. Qiu, J. Pearson, S.D. Bader. Phys. Rev. Lett. **70**, 1006 (1993).
- [4] Z.H. Nazir, C.-K. Lo, M. Hardiman. J. Magn. Magn. Mater. **156**, 435 (1996).
- [5] C. Martinez Boubeta, C. Clavero, J.M. Garcia-Martin, G. Armelles, A. Cebollada, L.I. Balcells, J.L. Menendez, F. Piro, M.F. Toney. Phys. Rev. B **71**, 014 407 (2005).
- [6] P. Torelli, S. Benedetti, P. Luches, L. Gragnaniello, J. Fujii, S. Valeri. Phys. Rev. B **79**, 035 408 (2009).
- [7] J. Chen, J.L. Erskine. Phys. Rev. Lett. **68**, 1212 (1992).
- [8] Y. Mo, K. Varga, E. Kaxiras, Z.Y. Zhang. Phys. Rev. Lett. **94**, 155 503 (2005).
- [9] S. Rohart, Y. Girard, Y. Nahas, V. Repain, G. Rodary, A. Tejada, S. Rousset. Surf. Sci. **602**, 28 (2008).
- [10] V. Gougo dos Santos, J. Geshev, J.E. Schmidt. S.R. Teixeira, L.G. Pereira. Phys. Rev. B **61**, 1311 (2000).
- [11] M. Cougo dos Santos, J. Geshev, L.G. Pereira, M.C.M. Alves, J.E. Schmidt. Phys. Rev. B **70**, 104 420 (2004).
- [12] M.V. Gomoyunova, I.I. Pronin, D.E. Malygin, A.S. Voronchihin, D.V. Vyalikh, S.L. Molodtsov. Surf. Sci. **601**, 5069 (2007).
- [13] I.I. Pronin, M.V. Gomoyunova, D.E. Malygin, D.V. Vyalikh, Yu.S. Dedkov, S.L. Molodtsov. J. Appl. Phys. **104**, 104 914 (2008).
- [14] I.I. Pronin, M.V. Gomoyunova, D.E. Malygin, D.V. Vyalikh, Yu.S. Dedkov, S.L. Molodtsov. Appl. Phys. A **94**, 467 (2009).
- [15] М.В. Гомоюнова, И.И. Пронин, С.М. Соловьев, Д.В. Вялых, С.Л. Молодцов. ФТТ **52**, 377 (2010).
- [16] Ch. Roth, F.U. Hillebrecht, H.B. Rose, E. Kisker. Phys. Rev. Lett. **70**, 3479 (1993).
- [17] F. Sirotti, G. Rossi. Phys. Rev. B **49**, 15 682 (1994).
- [18] N. Janke-Gilman, M. Hochstasser, R.F. Willis. Phys. Rev. B **70**, 184 439 (2004).
- [19] И.И. Пронин, М.В. Гомоюнова, Д.Е. Малигин, Д.В. Вялых, Ю.С. Дедков, С.Л. Молодцов. ФТТ **50**, 533 (2008).
- [20] M.V. Gomoyunova, I.I. Pronin, N.R. Gall, S.L. Molodtsov, D.V. Vyalikh. Surf. Sci. **578**, 174 (2005).
- [21] R. Klaesges, C. Carbone, W. Everhardt, C. Pampuch, O. Rader, T. Kachel, M. Gudat. Phys. Rev. B **56**, 10 801 (1997).
- [22] S. Hong, P. Wetzel, G. Gewinner, D. Bolmont, C. Pirri. J. Appl. Phys. **78**, 5404 (1995).