

На правах рукописи

Тарасов Иван Анатольевич

**РАЗВИТИЕ МЕТОДИКИ ЭЛЛИПСОМЕТРИЧЕСКОГО КОНТРОЛЯ
ПАРАМЕТРОВ НАНОСТРУКТУР Fe/Si В ПРОЦЕССЕ РОСТА**

Специальность 01.04.01 – приборы и методы экспериментальной физики

АВТОРЕФЕРАТ
диссертации на соискание ученой степени
кандидата физико-математических наук

Красноярск – 2014

Работа выполнена в Федеральном государственном бюджетном учреждении науки Институте физики им. Л.В. Киренского Сибирского отделения Российской академии наук.

Научный руководитель: кандидат технических наук, доцент
Варнаков Сергей Николаевич

Официальные оппоненты: доктор химических наук,
зам. директора по научной работе
Института катализа им.
Г.К. Борескова СО РАН
Мартьянов Олег Николаевич;
доктор технических наук, профессор,
заведующий научно-образовательным
центром (кафедрой) ЮНЕСКО «Новые
материалы и технологии» Сибирского
федерального университета,
Лепешев Анатолий Александрович

Ведущая организация: Федеральное государственное бюджетное
учреждение науки Институт физики
полупроводников им. А.В. Ржанова
Сибирского отделения Российской
академии наук.

Защита состоится «__» _____ 2014 г. в __ часов __ минут на заседании
диссертационного совета Д 003.055.01 при Институте физики им.
Л.В. Киренского СО РАН по адресу: 660036, г. Красноярск, Академгородок,
50, стр. 38.

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке Института физики им.
Л.В. Киренского СО РАН.

Автореферат разослан «__» _____ 2014 г.

Ученый секретарь
диссертационного совета Д 003.055.01
доктор физико-математических наук

Втюрин Александр Николаевич

ОБЩАЯ ХАРАКТЕРИСТИКА РАБОТЫ

Актуальность темы

Потребность в получении и исследовании новых функциональных материалов для электронной промышленности обусловлена необходимостью увеличения эффективности работы устройств, выполняющих переработку, хранение и передачу информации [1]. В частности, дальности и объёма передаваемой информации, скорости обработки и плотности её сохранения, энергоэффективности работы устройств, а также стоимости, доступности и экологичности используемых материалов [2]. Ясно, что для выполнения таких задач наиболее выгодным оказывается использование в качестве основы уже существующих в электронной промышленности технологий и материалов, поскольку это не вызовет дорогостоящего переоснащения производств [3].

Одним из наиболее многообещающих комплексов материалов, способных найти применение в развитии средств обработки, хранения и передачи информации, является система «железо – кремний» [3]. Так, для спинтроники – новой области электроники, где носителем информации является не электрический ток, а спин электрона, представляет большой интерес использование в гибридных наноструктурах [4] в качестве магнитного материала тонких плёнок железа и силицида железа Fe_3Si , позволяющих обеспечивать высокую степень спиновой поляризации при инжекции электронов в объём полупроводника [1, 5]. В свою очередь, многослойные системы $(Fe/Si)_n$ и $(Fe_3Si/\beta-FeSi_2)_n$ на подложках кремния обнаруживают явления межслоевого обменного взаимодействия и гигантского магнетосопротивления, что может способствовать их применению в качестве носителей информации и функционального материала для энергонезависимой памяти [6]. С другой стороны, дисилицид железа $\beta-FeSi_2$, являющийся прямозонным полупроводником с шириной запрещённой зоны 0.85 эВ при комнатной температуре, может найти применение в оптоэлектронике, как эмиттер инфракрасного излучения на длине волны 1.5 мкм, что соответствует третьему окну прозрачности оптоволокна [7]. Данное соединение пригодно также для преобразования солнечной энергии в электричество [8]. Кроме того, внимание исследователей привлекает моносилицид железа $FeSi$, который проявляет аномальные температурно-зависимые электрические, оптические и магнитные свойства, схожие со свойствами кондо-изоляторов, а при замещении атомов железа атомами кобальта обнаруживает необычное положительное магнетосопротивление и большой аномальный эффект Холла, что также делает его потенциальным кандидатом для применения в спинтронике [9]. Стоит отметить также ферромагнитный силицид Fe_5Si_3 , имеющий температуру Кюри 380 °С, включения которого в матрицу кремния приводят к появлению эффекта гигантского магнетосопротивления [10].

Получение тонкоплёночных структур такого рода соединений напрямую связано с использованием вакуумных установок, обеспечивающих необходимую чистоту получаемых материалов [11]. Толщины формируемых плёнок в упоминаемых работах варьируются от долей до десятков нанометров.

Обычно технологические параметры роста выбираются посредством предварительных калибровок, которые могут значительно изменяться в процессе роста. В связи с этим существует необходимость контроля толщины отдельных слоёв структуры в процессе формирования. Кроме того важно получать информацию о других физических характеристиках растущей плёнки – морфологии поверхности, структурных, а также оптических свойствах.

Из известных экспериментальных методик, позволяющих *in situ* вести контроль толщины плёнок в процессе роста, можно выделить наиболее широко используемые: измерение толщины на основе разности биений кварцевых резонаторов [12], дифракцию отражённых быстрых электронов [13], а также эллисометрию [14]. Для получения достоверной толщины формируемых плёнок с помощью кварцевых резонаторов необходимо располагать кварцевые датчики максимально близко к области синтеза и обеспечивать их термостабильность, что требует дополнительного усложнения в технике эксперимента. Кроме того, данный способ анализа неудобен при формировании многокомпонентных систем. Метод дифракции быстрых электронов позволяет рассчитать толщину покрытия по осцилляциям зеркального рефлекса при послойном росте эпитаксиальных плёнок, но при формировании поликристаллических и аморфных структур измерение толщины данным методом невозможно. Данный метод эффективен также при определении фазового состава и морфологии поверхности формируемых структур.

Метод эллисометрия является очень чувствительным методом, позволяющим практически непрерывно получать информацию о процессах, происходящих на поверхности образца *in situ*, не оказывая влияния на растущую структуру. Помимо толщины из результатов эллисометрического эксперимента можно получать информацию об оптических свойствах, в частности, определять профили оптических постоянных по толщине неоднородного слоя [15, 16]. С появлением быстродействующих эллисометров, которые могут обеспечивать практически непрерывный поток эллисометрических данных, измеренных в процессе роста плёнок, появились и новые возможности для решения обратной задачи эллисометрии. Такая задача достаточно просто решается, когда известна зависимость эллисометрических параметров от толщины [15]. Однако в реальном эксперименте эллисометрические параметры измеряются в процессе роста как функции времени, и их зависимость от толщины можно установить весьма приближённо, если каким-либо образом прокалибровать скорость роста.

Таким образом, при интерпретации эллисометрических данных возникают сложности при решении обратной задачи [17], к примеру, при выборе адекватной оптической модели сформированной структуры, которая бы описывала с приемлемой точностью реальный образец [18].

Однако для предварительной интерпретации экспериментальных данных непосредственно в процессе роста иногда достаточно использовать алгоритм с простой оптической моделью, позволяющий в реальном времени оценивать с

заданной точностью толщину и оптические постоянные синтезируемой плёнки.

Цель работы

Целью настоящей работы является создание и реализация экспресс-методики, позволяющей вести контроль толщины и оптических постоянных структур на основе системы Fe/Si в процессе их роста.

В связи с этим в работе были поставлены следующие **задачи**:

1. Разработать методику, позволяющую проводить анализ зависимостей толщины и оптических постоянных синтезируемых структур от времени на основе данных *in situ* одноволновой эллипсометрии. С целью проверки эффективности работы методики провести численные эксперименты на основе произвольных профилей оптических постоянных и толщины в зависимости от времени «роста».

2. Разработать программное обеспечение, позволяющее проводить анализ оптико-геометрических параметров растущей плёнки в масштабе реального времени, а также позволяющее выполнять расширенный анализ полученных в ходе эллипсометрического эксперимента данных.

3. Провести апробацию разработанной методики с использованием эллипсометрических экспериментальных данных, соответствующих синтезу гибридных наноструктур $Fe/SiO_2/Si(100)$. Сравнить результаты расчёта толщины с результатами рентгеноспектрального флуоресцентного анализа и просвечивающей электронной микроскопии. Применить методику для характеристики процессов роста мультислойной структуры $(Fe/Si)_3/SiO_2/Si(100)$.

4. Используя разработанную методику, получить профили зависимости оптических постоянных и толщины от времени синтеза тонких плёнок полупроводникового дисилицида железа $\beta-FeSi_2$ и ферромагнитного металлического силицида Fe_3Si .

Научная новизна

В диссертационном исследовании разработан и реализован алгоритм, позволяющий проводить экспресс-контроль толщины и оптических постоянных структур *in situ* в масштабе реального времени. С использованием разработанного алгоритма получены профили изменения комплексного показателя преломления и толщины в процессе синтеза тонких плёнок Fe , ферромагнитного силицида Fe_3Si и полупроводникового дисилицида $\beta-FeSi_2$. Получена зависимость диэлектрической проницаемости от энергии фотона для плёнок ферромагнитного силицида Fe_3Si в области $E = 1.16 \div 4.96$ эВ.

Практическая значимость

Использование результатов выполненных исследований позволяет проводить контролируемый синтез аморфных, поликристаллических и эпитаксиальных наноструктур в условиях сверхвысокого вакуума, получать информацию об изменении оптических и структурных характеристик растущих плёнок; Позволяет реализовать возможность определения зависимостей различных процессов формирования наноструктур от технологических параметров.

Поскольку высокие требования к качеству и стабильности свойств функциональных материалов непрерывно растут, полученные результаты открывают перспективы использования разработанного метода в их производстве.

Достоверность полученных с помощью разработанной экспресс-методики параметров толщины и оптических постоянных синтезированных наноструктур Fe/Si обеспечивается их сравнением с результатами, полученными методами просвечивающей электронной микроскопии (ПЭМ), рентгеноспектрального флуоресцентного анализа (РСФА), многоугловой *ex situ* спектральной эллипсометрии, а также с имеющимися литературными данными об оптических свойствах структур системы Fe/Si .

Положения, выносимые на защиту:

1. Разработанная эллипсометрическая экспресс-методика позволяет определять толщину и профили оптических постоянных в процессе роста наноструктур $Fe/SiO_2/Si(111)$ и многослойных систем $(Fe/Si)_3/SiO_2/Si(100)$ с погрешностью не более 6.5 %.

2. Разработанная экспресс-методика позволяет определять однородность тонких плёнок полупроводникового дисилицида железа $\beta-FeSi_2$ и металлического силицида Fe_3Si с помощью анализа восстановленных профилей оптических постоянных n и k .

3. Разработанная экспресс-методика позволяет определять значение эффективной толщины плёнки системы Fe/Si , при которой происходит образование сплошного слоя.

Апробация работы. Основные результаты диссертационной работы были представлены на VI-ой школе «Метрология и стандартизация в нанотехнологиях и nanoиндустрии», Екатеринбург, 2013 г.; на II-ой Всероссийской научной конференции «Методы исследования состава и структуры функциональных материалов», Екатеринбург, 2013 г.; на Международной конференции по наномagnetизму и его применению «DICNMA», Сан-Себастьян, Испания, 2013 г.; на VIII-ой Международной конференции по эллипсометрии «8th Workshop Ellipsometry», Дрезден, Германия, 2014 г.

Личный вклад автора заключается в разработке и реализации алгоритма, позволяющего проводить экспресс-контроль толщины и оптических постоянных структур *in situ* в масштабе реального времени, также в обработке и анализе полученных данных. Автор принимал активное участие в планировании и проведении экспериментов по получению всех описываемых в данной работе структур.

Структура и объем диссертации. Работа состоит из введения, пяти глав, заключения и списка цитируемой литературы. Диссертация изложена на 137 страницах машинописного текста, включая 66 рисунков и 11 таблиц. Библиографический список содержит 112 наименований.

ОСНОВНОЕ СОДЕРЖАНИЕ РАБОТЫ

Во введении обосновывается актуальность выбранной диссертационного исследования темы, формулируются цели и задачи, обосновывается выбор объекта исследования.

Первая глава посвящена рассмотрению теоретических основ метода эллипсометрии в рамках простейших моделей отражающих систем: полубесконечная однородная изотропная среда, изотропные однослойные и многослойные системы. Рассматриваются прямая и обратная задачи эллипсометрии. Показано существование неопределённости при решении обратной задачи эллипсометрии для оптической системы «однородная изотропная полубесконечная подложка - однородная изотропная плёнка» с тремя неизвестными параметрами: толщиной d , показателями преломления n и поглощения k . Подробное рассмотрение получили существующие эллипсометрические методики решения обратной задачи эллипсометрии для случая реального масштаба времени. Показано, что существующие методики определения оптико-геометрических параметров растущей плёнки имеют определённые границы применимости.

Кроме того, здесь на основании литературных данных были рассмотрены особенности формирования наноструктур системы Fe/Si .

В конце главы формулируются задачи настоящей диссертационной работы.

Во второй главе приводится описание работы экспресс-методики определения толщины d , показателей преломления n и поглощения k в процессе роста структур на основе системы Fe/Si . Изложены принципы, на которых основана работа предлагаемого вычислительного алгоритма.

Для описания величины эволюции оптических постоянных n и k слоёв удобно использовать величину градиента оптических постоянных по толщине G [16]:

$$G = \lambda \left| \frac{dN}{dz} \right|, \quad (1)$$

где N – комплексный показатель преломления ($N = n - ki$), λ – длина волны зондирующего излучения, z – толщина растущей плёнки. Тогда, каким бы большим ни было значение G , всегда можно представить такое бесконечно малое dz , для которого изменение оптических постоянных будет таким малым, что для двух пар эллипсометрических углов (ψ_i и Δ_i) и (ψ_{i+1} и Δ_{i+1}), где $i=1,2,3\dots n$, можно сделать упрощение, что оптические постоянные или толщина оказываются неизменными для этих двух измерений.

Таким образом, мы можем использовать для вычисления трёх неизвестных величин n , k , d соседние пары эллипсометрических углов (ψ_i и Δ_i) и (ψ_{i+1} и Δ_{i+1}). Ясно, что для реализации данного упрощения в целях мониторинга процессов роста требуется наличие оборудования, позволяющего выполнять измерения эллипсометрических углов с высокой частотой.

Отметим, что современное эллипсометрическое оборудование позволяет выполнять измерения с интервалом порядка одной миллисекунды [19], что может оказаться достаточным для реализации экспресс-методики мониторинга физических параметров создаваемой структуры в условиях сверхвысокого вакуума в масштабе реального времени.

Наиболее удобным способом для осуществления поставленных задач оказывается использование численных методов решения нелинейных трансцендентных уравнений, поскольку данные методы довольно легко и быстро позволяют находить неизвестные корни уравнений, если выбранное приближённое значение лежит вблизи истинного значения корня. Таким образом, за основу экспресс-методики решения обратной задачи эллипсометрии в данной работе был взят итерационный численный метод Ньютона, расширенный на область комплексного переменного [20].

Рассмотрим работу алгоритма на примере первых трёх циклов. В процессе роста плёнки измеряется массив эллипсометрических углов ψ и Δ . В первом цикле из массива выбирается первая пара значений ψ_1 и Δ_1 , для которой задаётся первое приближение определяемой величины, в данном случае это d . В зависимости от того, что осаждается, кремний или железо, задаются известные в литературе значения оптических параметров этих материалов в качестве нулевых приближений [21, 22]. Затем производится расчёт отношений коэффициентов отражения [14] для нулевого приближения. Найденные корни уравнения выбираются в соответствии с условием окончания поиска неизвестного. Таким образом, для установленного значения толщины рассчитывается показатель преломления n и показатель поглощения k . Полученные корни n и k являются нулевым приближением при расчёте толщины d для второй пары экспериментальных значений ψ_2 и Δ_2 . Далее, используя найденное значение d , вычисляем оптические постоянные n и k для третьей пары эллипсометрических углов ψ_3 и Δ_3 . Расчёт продолжается по данной схеме до тех пор, пока не будут рассчитаны d , n , k для всего массива эллипсометрических измерений, полученных в результате эксперимента.

Для предварительной проверки разработанных алгоритмов был проведён численный эксперимент, где был смоделирован рост плёнки с изменяющимися оптическими параметрами. Зависимости показателей преломления и поглощения от толщины модельной структуры в процессе её «роста» задавались в произвольной форме. Затем была решена прямая задача и рассчитаны зависимости эллипсометрических параметров ψ и Δ от времени «роста». Далее с помощью разработанного алгоритма были восстановлены профили n и k (рис. 1а и 1б соответственно) и зависимость толщины плёнки от времени «роста» (рис. 1с).

После анализа полученных данных оказалось, что при использовании

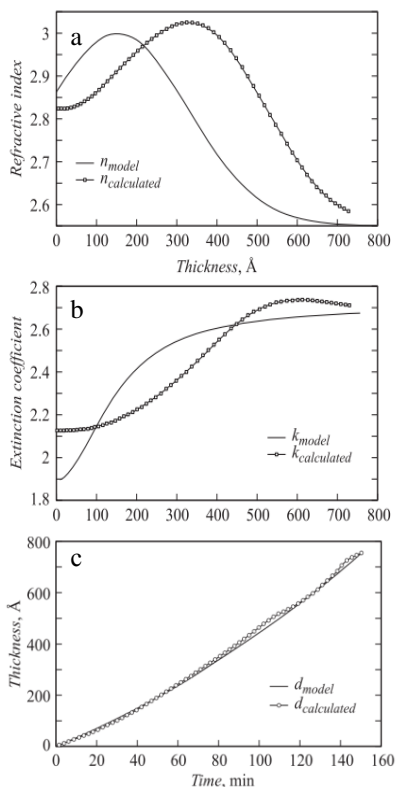


Рис.1 Модельные и восстановленные профили оптических постоянных «растущей» пленки при численном эксперименте: а – профиль n ; б – профиль k ; в – исходная и восстановленная зависимость толщины

разработанного алгоритма ошибка определения толщины не превышает 5%. Однако следует заметить, что восстановленные профили показателей преломления и поглощения качественно отражают зависимость исходных профилей по толщине. В процессе формирования наноструктур системы Fe/Si на распределение оптических постоянных влияют структурные характеристики, дефектность растущих слоёв, наличие инородных включений и другие факторы. Поэтому в процессе эллипсометрического контроля синтеза структур представляет ценность восстановление скорее не точного вида профиля, а качественного распределения оптических постоянных по толщине.

Кроме того, был проведен анализ зависимости функции ошибки σ от среднего коэффициента градиента оптических постоянных G_{ave} (среднего арифметического параметра G по всему профилю N). Для этого были получены зависимости изменения эллипсометрических углов ψ и Δ для различных значений градиента оптических постоянных G (1) в двух случаях. В первом случае использовалось приближение оптической модели растущей плёнки с комплексным показателем, меняющимся со временем по всей толщине (оптическая модель № 1). Т.е. в любой момент времени (t) пленка характеризуется определёнными значениями d , n и k , при этом все эти

значения изменяются с течением времени. Во втором случае использовалась оптическая модель, в которой окончательная структура представляет собой многослойную плёнку, где оптические постоянные меняются от одного значения для нижнего слоя до другого значения для верхнего слоя (оптическая модель № 2). На рис. 2 представлены результаты расчётов функции ошибки [17] в зависимости от параметра G_{ave} .

Из рис. 2 видно, что, начиная со значений параметра G_{ave} , близких к нулю (оптическая модель № 2), ошибка вычислений уменьшается, и для показателя

преломления и поглощения достигает минимума при значении параметра G_{ave} , равном 9.33, и затем резко возрастает с его дальнейшим увеличением для оптических постоянных и монотонно увеличивается для параметра толщины. Для случая оптической модели № 1 ошибка вычислений имеет сходный характер поведения, но по абсолютному значению имеет большие величины. Отметим также, что после достижения параметра G_{ave} значения, равного 12.76, функция ошибки по толщине резко возрастает с дальнейшим увеличением G_{ave} , что не идентично случаю оптической модели № 2.

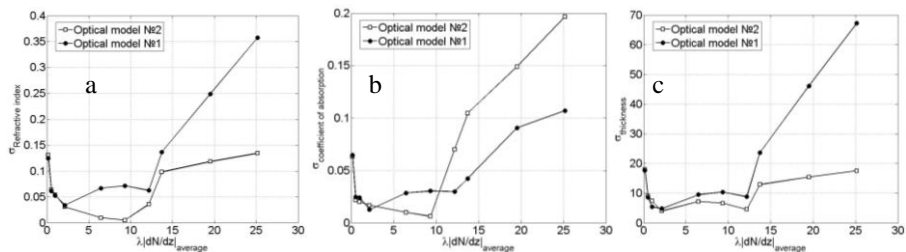


Рис. 2 Зависимости функции ошибки σ от среднего коэффициента градиента оптических постоянных G_{ave} для а) показателя преломления; б) показателя поглощения; в) толщины

Для случая роста плёнок, описываемого оптической моделью № 2, определение профилей изменения толщины оказывается приемлемым для использования данного алгоритма *in situ* в масштабе реального времени даже при значениях G_{ave} , близких к 25. Что касается показателей преломления и поглощения, то здесь приемлемая точность вычислений достигается при значениях параметра G_{ave} ниже 12. Область же значений градиента оптических постоянных, для которой наблюдается лучшая сходимость (ниже 0.01 в случае оптической модели № 2), лежит по параметру G_{ave} в пределах от 5 до 10.

Во второй главе также приводится подробное описание разработанного программного обеспечения «SingleW», предназначенного для обработки и анализа данных одноволновой кинетической эллипсометрии, получаемых в процессе синтеза слоистых наноструктур.

Третья глава посвящена обсуждению результатов, полученных при экспериментальной апробации экспресс-методики определения оптических постоянных. Экспериментальная апробация экспресс-методики определения оптических параметров и толщины была выполнена на серии тонкоплёночных структур *Fe* на подложках монокристаллического кремния *SiO₂/Si(100)* с различной толщиной естественного окисла диоксида кремния и железа.

Результаты расчёта толщины и оптических постоянных по предложенной методике для структуры *Fe/SiO₂/Si(100)* представлены на рис. 3. Вычисленное значение толщины плёнки *Fe* составляет 49 нм, что хорошо согласуется с данными РСФА ($d_{Fe} = 49.2$ нм). Расчётные величины оптических констант $n_{Fe} = 2.82$, $k_{Fe} = 2.86$ для сформированной пленки *Fe* отличаются не более чем

на 6 % от показателей преломления и поглощения для объёмного Fe , полученных другими авторами [22].

График изменения оптических постоянных (рис. 3а) условно можно разделить на три характерные области. На участке AB наблюдается резкое возрастание оптических показателей пленки Fe . В данном случае мы имеем дело с островковым ростом поликристаллического железа, и зондирующий пучок, отражаясь от поверхности в данной области, несёт в себе информацию об отражении как от образованных осаждаемым веществом островков, так и от поверхности самой подложки. Это продолжается до момента образования однородного слоя железа. Таким образом, точка B (толщина $Fe \sim 5$ нм) может соответствовать образованию однородного слоя железа.

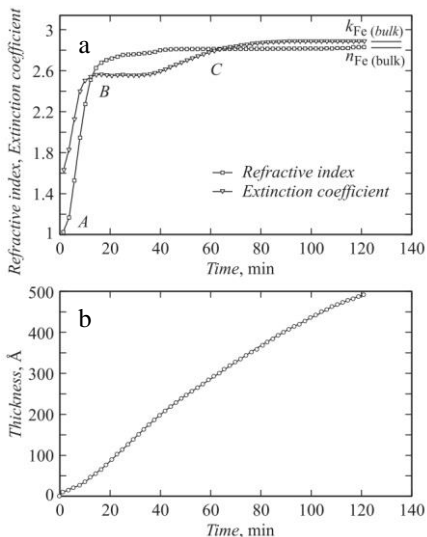


Рис. 3 Контроль изменения показателей преломления а) n и поглощения k и б) толщины d в процессе роста плёнки Fe

Участок BC соответствует росту однородной плёнки железа, причём влияние подложки $SiO_2/Si(100)$ на значение показателя преломления и поглощения структуры существенно. В точке C (толщина $Fe \sim 37$ нм) данное влияние снижается в связи с большим поглощением в железе, и показатели преломления и поглощения выходят на значение, характерное для объёмного Fe , не изменяющееся в процессе дальнейшего роста.

Значения конечной толщины полученных плёнок Fe сравниваются с полученными методами ПЭМ и РСФА. На рис. 4 показано распределение погрешности расчёта конечной толщины синтезированных плёнок Fe с помощью экспресс-методики относительно данных рентгеноспектрального флуоресцентного анализа.

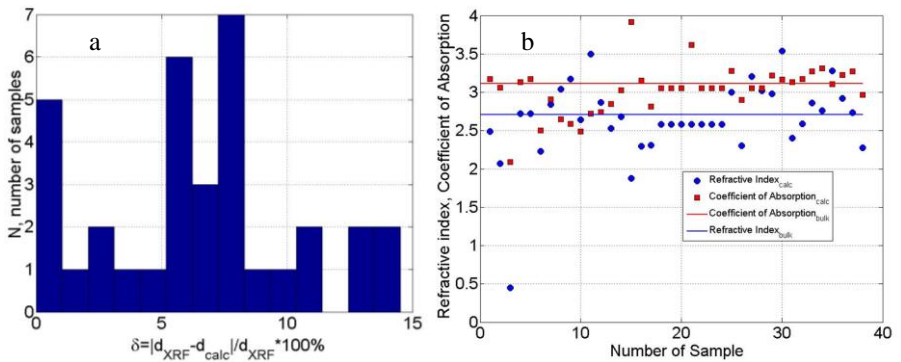


Рис. 4 а) Диаграмма распределения относительной погрешности измерения толщины синтезированных плёнок Fe ; б) вычисленные окончательные показатели преломления и поглощения полученных плёнок Fe для каждого образца

Таким образом, из диаграммы (рис. 4а) видно, что при одновременном определении трёх неизвестных параметров плёнки d_{Fe} , n_{Fe} , k_{Fe} при *in situ* контроле в масштабе реального времени методом одноволновой эллипсометрии средняя величина δ_d , рассчитанная как среднее арифметическое значений δ из рис. 4а, не превышает значения 6.5 %, что сравнимо с погрешностями других экспериментальных методик.

На рис. 4 приводятся вычисленные окончательные показатели преломления и поглощения всех полученных плёнок Fe . Из рисунка видно, что показатели преломления и поглощения плёнки оказываются характерными для металлических плёнок и близкими к величинам, известным для тонких плёнок железа [32]. Для показателя преломления разница с известной в литературе величиной в среднем не превышает 8 %, для коэффициента экстинкции – 1 %.

В четвёртой главе рассматриваются результаты, полученные при определении оптико-геометрических параметров многослойной плёнки $(Fe/Si)_3/SiO_2/Si(100)$. Проводится сравнение с результатами ПЭМ и РСФА анализа полученной структуры. Общая толщина многослойной $(Fe/Si)_3$ плёнки из анализа ПЭМ равна 31.1 нм. Толщина слоёв Fe равна 26.2 нм. По данным РСФА анализа общая толщина плёнок железа составила 23.4 нм. Результаты расчёта толщины слоёв, полученные предложенной в данной работе методикой, и данные, полученные из ПЭМ анализа, сведены в таблицу 1.

Как видно, результаты расчётов толщины имеют хорошую согласованность с данными по толщине для двух слоёв железа – первого и второго слоя железа, а также для толщины защитного слоя кремния, полученными в результате обработки изображения ПЭМ. Однако они имеют плохое соответствие значением толщины третьего слоя железа и двух кремниевых прослоек.

Таким образом, в результате анализа данных одноволновой лазерной эллипсометрии, полученных в процессе формирования структуры

$(Fe/Si)_3/SiO_2/Si(100)$ и последующего исследования методом просвечивающей электронной микроскопии, были определены геометрические параметры

Таб. 1 Сравнение значений толщины слоев структуры $(Fe/Si)_3/SiO_2/Si(100)$, полученных методом эллипсометрии и ПЭМ анализа

Слой	Толщина по ПЭМ, нм	Толщина по эллипсометрии, нм
2 - SiO_2	1.5	1.6
3 - Fe	10.4	10.7
4 - Si	1.7	3.2
5 - Fe	7.5	7.3
6 - Si	1.7	2.8
7 - Fe	8.3	5.2
8 - Si	30	32.4

отдельных слоёв. Суммарное значение толщины сформированных плёнок Fe имеют хорошую сходимость с результатами РСФА исследований. Отличие в толщине слоёв Fe по данным ПЭМ ($d_{Fe} = 26.2$ нм), по всей видимости, связано с особенностями экспериментальных методов. Эллипсометрический и РСФА анализы относятся к интегральным методикам, в то время как ПЭМ–метод локального анализа.

Показано, что процессы формирования слоёв железа носят сложный характер. Так на структурные и оптические свойства каждого последующего слоя железа оказывает сильное

влияние качество поверхности, формируемое предыдущими слоями.

Кремниевые прослойки со значениями толщины около 2 нм, рассматриваемые в данной работе, представляют неоднородную по составу матрицу, содержащую аморфный кремний и различные аморфные формирования системы Fe/Si , твёрдые растворы, характеризующиеся высоким коэффициентом поглощения.

Пятая глава посвящена практическому применению разработанной методики и анализу процессов синтеза поликристаллических $Fe_3Si/SiO_2/Si(111)$, β - $FeSi_2/Si(100)$ и эпитаксиальной $Fe_3Si/Si(111)$ плёнок. Основными результатами являются получение и характеристика оптических и структурных свойств указанных структур.

Полученные с помощью разработанной методики профили оптических постоянных n и k и толщины d для структур $Fe_3Si/SiO_2/Si(111)$ и $Fe_3Si/Si(111)$ (рис. 5) показывают, что данные структуры являются оптически однородными. Было обнаружено, что образование сплошного слоя при росте поликристаллического Fe_3Si происходит неравномерно по зондируемой площади, в отличие от эпитаксиально ориентированного слоя Fe_3Si . Толщина плёнок Fe_3Si , при которой происходит образование сплошного слоя, составляет $d \approx 5$ нм.

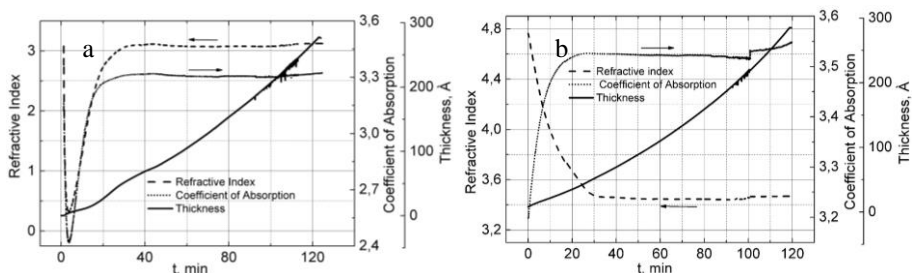


Рис. 5 Зависимость показателей преломления, поглощения и толщины а) поликристаллической $Fe_3Si/SiO_2/Si(111)$ и б) эпитаксиальной $Fe_3Si/SiO_2/Si(111)$ плёнок от времени осаждения материалов

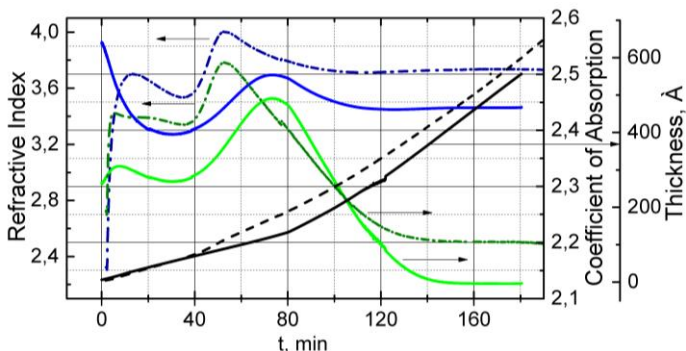


Рис. 6 Зависимость показателей преломления (синий), поглощения (зелёный) и толщины (чёрный) плёнок $\beta-FeSi_2/Si(100)$ от времени осаждения материалов при стехиометрических соотношениях атомарных процентов кремния к железу равных 2 (сплошные линии) и 0.33 (штрих пунктир)

Профили n и k (рис. 6) для случая синтеза поликристаллических структур $\beta-FeSi_2/Si(100)$, полученных в нестехиометрическом и стехиометрическом соотношениях атомарных процентов кремния к железу для данной фазы 0.33 и 2 соответственно, имеют сложный вид, что свидетельствует об их неоднородности по толщине. В данной главе было проведено подробное рассмотрение эволюции картин дифракции отражённых быстрых электронов для указанных структур. Показано, что определённые этапы в изменении структурных свойств и морфологии плёнок соответствуют имеющимся особенностям в профилях n и k .

Были получены спектральные зависимости показателя преломления n и коэффициента поглощения k всех указанных структур. Показано, что спектры оптических постоянных для эпитаксиальной плёнки Fe_3Si имеют наиболее близкое соответствие с рассчитанными из первых принципов методом функционала плотности спектрами n и k (рис. 7). Полученные спектральные

зависимости показателя преломления и коэффициента поглощения для β - $FeSi_2/Si(100)$ имеют качественное согласие с известными литературными данными.

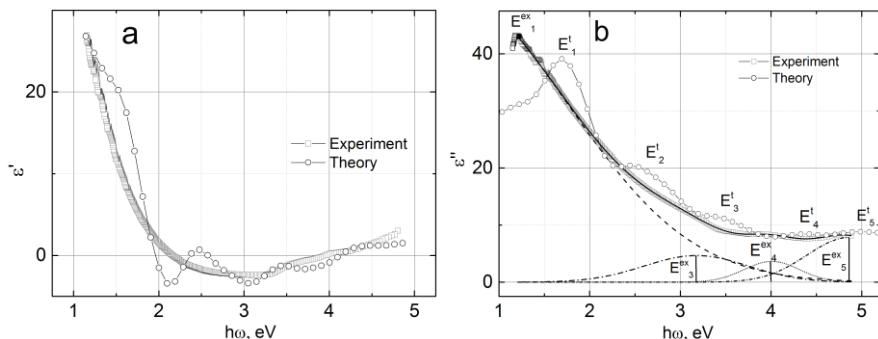


Рис. 7 Энергетическая зависимость действительной (а) и мнимой части (б) диэлектрической проницаемости эпитаксиальной плёнки Fe_3Si толщиной 27 нм. Экспериментальные результаты ($T = 296$ К) (квадраты) сравниваются с теоретически рассчитанными ($T = 0$ К) (круги). Сплошной линией отмечена аппроксимация суммой гауссовых компонент (E_1-E_4)

Таб. 2 Сравнение результатов расчёта оптических постоянных n и k экспресс-методикой и ex situ методом спектральной многоугловой эллипсометрии ($\lambda = 632.8$ нм)

Метод		Образец № 1 (2)	Образец № 2 (0.33)
Спектральная эллипсометрия [23] $T = 23$ °C	n	3.515	3.214
	k	2.461	1.562
	d	50.1 нм	49.7 нм
Экспресс-методика $T = 450$ °C	n	3.465	3.363
	k	2.126	1.931
	d	55.5 нм	-

Наилучшая согласованность результатов расчёта конечных показателей преломления и поглощения (таблица 2), полученных экспресс-методикой, с результатами, полученными методом спектральной многоугловой эллипсометрии ($\lambda = 632.8$ нм), наблюдается для случая плёнок полупроводникового дисилицида β - $FeSi_2$.

Основные результаты и выводы

1. Разработана и реализована методика анализа эллипсометрических данных на основе нового алгоритма, позволяющая проводить экспресс-контроль толщины и оптических постоянных формирующихся структур Fe/Si в процессе их роста.

2. Проведена апробация алгоритма на численных экспериментах. Разработано программное обеспечение «SingleW», позволяющее проводить анализ данных одноволновой эллипсометрии. Реализована возможность применения разработанных алгоритмов непосредственно в процессе синтеза наноструктур в сверхвысоковакуумной камере молекулярно-лучевой эпитаксии «Ангара».

3. Проведена характеристика процесса синтеза структур $Fe/SiO_2/Si(100)$ и $(Fe/Si)_3/SiO_2/Si(100)$. Показано, что погрешность расчётов толщины синтезированных плёнок относительно данных рентгеноспектрального флуоресцентного анализа не превышает 6.5 %.

4. Установлено, что при совместном осаждении железа и кремния на подложку кремния разогретую до 150 °С сплошной слой Fe_3Si образуется при толщине пленки более 5 нм. Полученные с помощью разработанной методики профили оптических постоянных n и k и толщины d для сплошных слоёв $Fe_3Si/SiO_2/Si(111)$ и $Fe_3Si/Si(111)$ показывают, что данные структуры являются однородными по толщине. Впервые полученная экспериментально дисперсия показателя преломления n и коэффициента поглощения k для эпитаксиальной плёнки Fe_3Si имеет наиболее близкое соответствие с рассчитанной из первых принципов дисперсией n и k .

5. Показано, что при совместном осаждении железа и кремния на подложку кремния, разогретую до 450 °С на начальном этапе формирования плёнок $\beta-FeSi_2/Si(100)$ идёт островковый рост смеси фаз $\alpha-FeSi_2$, $\beta-FeSi_2$ и $\gamma-FeSi_2$. Полученные профили n и k показывают, что однородный слой $\beta-FeSi_2$ формируется при толщине более 20 нм.

Основные результаты диссертации опубликованы в следующих работах:

1. Тарасов, И.А. Оптические свойства эпитаксиальной плёнок $Fe_3Si/Si(111)$ / И.А. Тарасов, З.И. Попов, С.Н. Варнаков, М.С. Молокеев, А.С. Федоров, И.А. Яковлев, Д.А. Фёдоров, С.Г. Овчинников // **Письма в ЖЭТФ**. – 2014. – Т. 99. – С. 651.
2. Яковлев, И.А. Исследование структурных и магнитных характеристик эпитаксиальных плёнок $Fe_3Si/Si(111)$ / И.А. Яковлев, С.Н. Варнаков, Б.А. Беляев, С.М. Жарков, М.С. Молокеев, И.А. Тарасов, С.Г. Овчинников // **Письма в ЖЭТФ**. – 2014. – Т. 99. – С. 610.
3. Лященко, С.А. Исследование магнитооптических свойств тонких слоёв Fe in situ методами / С.А. Лященко, И.А. Тарасов, С.Н. Варнаков, Д.В. Шевцов, В.А. Швец, В.Н. Заблуда, С.Г. Овчинников, Н.Н. Косырев, Г.В. Бондаренко, С.В. Рыхлицкий // **ЖТФ**. – 2013. – Т. 83. – С. 139.
4. Тарасов, И.А. Система обработки и анализа данных одноволновой кинетической эллипсометрии (SingleW) / И.А. Тарасов, С.А. Лященко, С.Н. Варнаков, С.Г. Овчинников, И.А. Яковлев, Н.Н. Косырев // Свидетельство о регистрации программы. – 2013. – № 2013619178.
5. Тарасов, И.А. Эллипсометрическая экспресс-методика определения толщины и профилей оптических постоянных в процессе роста наноструктур $Fe/SiO_2/Si(100)$ / И.А. Тарасов, Н.Н. Косырев, С.Н. Варнаков, С.Г. Овчинников, С.М. Жарков, В.А. Швец, С.Г. Бондаренко, О.Е. Терещенко // **ЖТФ**. – 2012. – Т. 82. – С. 44.
6. Лященко, С.А. Автоматизация магнитоэллипсометрических in situ измерений на сверхвысоковакуумном комплексе для синтеза и исследования материалов спинтроники / С.А. Лященко, С.Н. Варнаков, И.А. Тарасов, Д.В. Шевцов, С.Г. Овчинников // **Вестник СибГАУ им. М.Ф. Решетнева**. – 2012. – Т. 44. – В. 4. – С. 162.
7. Tarasov, I.A. Time-resolved ellipsometric characterization of $(Fe/Si)_n$ multilayer film synthesis / I.A. Tarasov, S.N. Varnakov, I.A. Yakovlev, S.M. Zharkov, N.N. Kosyrev, S. G. Ovchinnikov // Abstract book of 8th Workshop Ellipsometry. – 2014. – P. 81.
8. Тарасов, И.А. Исследование оптических свойств тонких плёнок силицида железа, выращенных реактивной эпитаксией на поверхностях $Si(100)$ и $Si(111)$ / И.А. Тарасов, И.А. Яковлев, С.Н. Варнаков, С.Г. Овчинников // Сборник тезисов II-ой Всероссийской научной конференции «Методы исследования состава и структуры функциональных материалов» (МИССФМ-2013). – 2013. – С. 280.
9. Тарасов, И.А. Эллипсометрическая экспресс-методика определения толщины и профилей оптических постоянных наноструктур в процессе их роста / И.А. Тарасов, Н.Н. Косырев, С.Н. Варнаков, С.Г. Овчинников, С.М. Жарков, В.А. Швец // Сборник тезисов VI-ой школы «Метрология и стандартизация в нанотехнологиях и наноиндустрии». – 2013. – С. 60.

Список цитируемой литературы:

1. Wolf, S.A. Spintronics: A Spin-Based Electronics Vision for the Future / S.A. Wolf, D.D. Awschalom, R.A. Buhrman et al. // Science. – 2001. – Vol. 294. – P. 1488.
2. Wolf, S.A. The Promise of Nanomagnetism and Spintronics for Future Logic and Universal Memory / S.A. Wolf, Lu Jiwei, M.R. Stan // Proceedings of the IEEE. – 2010. – Vol. 98. – P. 2155.
3. Istratov, A.A. Iron contamination in silicon technology / A.A. Istratov, H. Hieslmair, E.R. Weber // Appl. Phys. A. – 2000. – Vol. 70. – P. 489.
4. Volkov, N. V. Magnetic-field- and bias-sensitive conductivity of a hybrid $Fe/SiO_2/p-Si$ structure in planar geometry / N.V. Volkov, A.S. Tarasov, E.V. Eremin et al. // J. Appl. Phys. – 2011. – Vol. 109. – P. 123924-1.
5. Fujita, Y. Room-temperature sign reversed spin accumulation signals in silicon-based devices using an atomically smooth $Fe_3Si/Si(111)$ contact / Y. Fujita, S. Yamada, Y. Ando et al. // J. Appl. Phys. – 2013. – Vol. 113. – P. 013916-1.
6. Yoshitake, T. Interlayer coupling in ferromagnetic epitaxial $Fe_3Si/FeSi_2$ superlattices / T. Yoshitake, T. Ogawa, D. Nakagauchi et al. // J. Appl. Phys. – 2006. – Vol. 89. – P. 253110-1.
7. Galkin, N.G. Room temperature 1.5 μm light-emitting silicon diode with embedded $\beta-FeSi_2$ nanocrystallites / N.G. Galkin, E.A. Chusovitin, D.L. Goroshko // Appl. Phys. Lett. – 2012. – Vol. 101. – P. 163501-1.
8. Liu, Z. Electrical and photovoltaic properties of iron-silicide/silicon heterostructures formed by pulsed laser deposition / Z. Liu, M. Watanabe, M. Hanabusa // Thin Solid Films. – 2001. – Vol. 381. – P. 262.
9. Sluchanko, N.E. Crossover in magnetic properties of $FeSi$ / N.E. Sluchanko, V. V. Glushkov, and S.V. Demishev et al. // Physical Review B. – 2001. – Vol. 65. – P. 064404-1.
10. Varadwaj, K.S.K. Phase-Controlled Growth of Metastable Fe_5Si_3 Nanowires by a Vapor Transport Method / K.S.K. Varadwaj, K. Seo, J. In et al. // Am. Chem. Soc. – 2007. – Vol. 129. – P. 8595.
11. Блинов, В.В. Установка МЛЭ для выращивания полупроводниковых плёнок и её интеграция на РС МКС / В.В. Блинов, В.П. Кошащенко, В.А. Алямовская и др. // Наноинженерия. – 2014. – Т. 1(31). – С. 15.
12. Berg, S. Nonlinearities in contact mechanics experiments with quartz crystal resonators / S. Berg, D. Johannsmann // Surface Science. – 2003. – Vol. 541. – P. 225.
13. Никифоров, А.И. Исследование процесса роста плёнки Ge на поверхности $Si(100)$ методом регистрирующей дифрактометрии / А.И. Никифоров, В.А. Черепанов, О.П. Пчеляков // Физика и техника полупроводников. – 2001. – Т. 35. – С. 9.

14. Ржанов, А.В. Основы эллипсометрии / А.В. Ржанов, К.К. Свиташев – Новосибирск: Наука, 1979. – 423 с.
15. Дагман, Э.Е. О решении обратной задачи эллипсометрии для неоднородных систем / Э.Е. Дагман, Р.И. Любинская, А.С. Мардежев и др. // Укр. Физ. Журн. – 1984. – Т. 29. – С. 187.
16. Швец, В.А. Определение профилей оптических постоянных неоднородных слоёв из эллипсометрических измерений *in situ* / В.А. Швец // Автометрия. – 1993. – № 6. – С. 25.
17. Azzam, R.M.A. Elipsometry and polarized light / R.M.A. Azzam, N.M. Bashara. – New York: North Holland Publishing Company, 1977. 583 p.
18. Косырев, Н.Н. Характеризация структурных свойств нанокластеров силицида железа в гетеросистемах *Si/Fe/Si* методом магнитоэллипсометрии / Н.Н. Косырев, В.Н. Заблуда, С.Н. Варнаков и др. // ЖСХ. – 2010. – Т.51. – С.104.
19. Техническое описание и инструкция по эксплуатации быстродействующего лазерного эллипсометра ЛЭФ-751М. – Новосибирск. 2002. – 50 с.
20. Mathews, J.H. Numerical methods. Using Matlab / J.H. Mathews, K.D. Fink. – Jersey: Prentice Hall. 2001. 715 p.
21. Thutupalli, G.K.M. The optical properties of amorphous and crystalline silicon / G.K.M. Thutupalli, S.G. Tomlin // J. Phys. C: Solid State Phys. – 1977. – Vol. 10. – P. 467.
22. Johnson, P.B. Optical constants of transition metal: Ti, V, Cr, Mn, Fe, Co, Ni and Pd / P.B. Johnson, R.W. Christy // Phys. Rev. B. – 1973. – Vol. 9. – P. 5056.
23. Urban III, F.K. Numerical ellipsometry: Analysis of thin metal layers using $n - k$ plane methods with multiple incidence angles / F.K. Urban III, D. Barton, T. Tiwald // Thin Solid Films. – 2009. – Vol. 518. – P. 1411.

Подписано в печать 01.06.2014. Заказ № 33
Формат 60x90/16. Усл. печ. л. 1. Тираж 70 экз.
Типография ФГБУН Института физики им. Л.В. Киренского СО РАН
660036, Красноярск, Академгородок, 50

