

PACS numbers: 68.55.Ln, 68.55.Nq, 68.65.Ac, 79.20.Fv, 81.15.Jj, 81.70.Jb, 82.80.Pv

Особенности оже-исследований ультратонких периодических металлических пленочных структур

В. М. Адеев, М. А. Васильев*, Е. А. Погорелов**

*Институт проблем материаловедения им. И. Н. Францевича НАН Украины,
ул. Кржижановского, 3,
03680, ГСП, Киев-142, Украина*

**Институт металлофизики им. Г. В. Курдюмова НАН Украины,
бульв. Акад. Вернадского, 36,
03680, ГСП, Киев-142, Украина*

***Институт магнетизма НАН и МОН Украины,
бульв. Акад. Вернадского, 36^б,
03680, ГСП, Киев-142, Украина*

Показана применимость метода оже-спектроскопии для исследования слоистых металлических пленочных структур Fe/(Au, Cu)/Tb с толщинами слоев до 30 Å на кремниевой подложке. Установлено, что слой Fe вступает во взаимодействие с подложкой, образуя силицид Fe. Толщин буферных слоев, использованных для защиты слоя Fe, оказалось недостаточно для полного устранения образования силицида.

Показано придатність методи Оже-спектроскопії щодо дослідження шаруватих металевих плівкових структур Fe/(Au, Cu)/Tb з товщинами шарів до 30 Å на кремнієвій підкладці. Виявлено, що шар Fe вступає у взаємодію з підкладкою, утворюючи силіцид Fe. Товщин буферних шарів, використаних для захисту шару Fe, виявилось недостатньо для повного запобігання утворенню силіциду.

In a present work, the applicability of Auger electron spectroscopy for studying layered metallic-film structures Fe/(Au, Cu)/Tb on Si substrate with a thickness of layers up to 30 Å is shown. As revealed, Fe layer is interacting with Si substrate, and as a result, Fe-silicide is formed. The thickness of buffer layers aimed to protect Fe layer appears to be insufficient for complete prevention of silicide formation.

Ключевые слова: оже-спектроскопия, ультратонкие пленки, многослойные пленочные структуры.

(Получено 11 ноября 2004 г.)

1. ВВЕДЕНИЕ

Важность исследования структуры и состава многослойных тонкопленочных систем обусловлена их использованием в современных областях микроэлектроники, в том числе системах магнитной памяти, магнитных датчиках и т. д. Интерес в этом плане представляют слоистые пленочные структуры на основе переходных и редкоземельных металлов ввиду уникальности магнитных свойств последних [1]. Однако вследствие сверхмалых толщин таких пленочных систем на их магнитные свойства сильное влияние могут оказывать различные неоднородности, связанные как со структурой [2], так и с составом, в особенности, если учесть высокую предрасположенность редкоземельных металлов к окислению. Традиционное использование просвечивающей электронной микроскопии [3] наталкивается на принципиальные сложности в подготовке соответствующих образцов в случае толщин пленок в несколько атомных слоев. В этом вопросе могут помочь исследования с помощью оже-спектроскопии, которые способны выявить действительный состав пленочных структур при использовании скрытых резервов этого метода.

2. ЭКСПЕРИМЕНТ

Пленочные образцы получали методом электронно-лучевого напыления в сверхвысоковакуумной системе с давлением остаточных газов $\approx 10^{-9}$ Торр. Скорость напыления составляла 0,1–0,4 Å/с и контролировалась кварцевым датчиком. Для оценки слоистой периодичности пленочных структур изготовлены два одинаковых контрольных образца специально для оже-спектроскопии с учетом ее разрешающей способности. Поэтому толщины слоев были выбраны большими, чем те, которые использовались в трехслойных структурах [1], и составляли 30 Å для каждого слоя. Оба образца представляли собой многослойную систему $[30\text{Fe}/30\text{Cu}/30\text{Tb}/30\text{Cu}]_4/20\text{Cu}$ на подложке из поликора (числа перед обозначениями элементов соответствуют толщине слоев в ангстремах). Один из образцов отожгли в вакууме при температуре 250°C в течение 30 мин.

3. РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЯ

Информацию о профилях концентрации каждого из элементов пленочной структуры получали ионным травлением с постоянной скоростью. Результирующий оже-спектр имеет вид зависимости

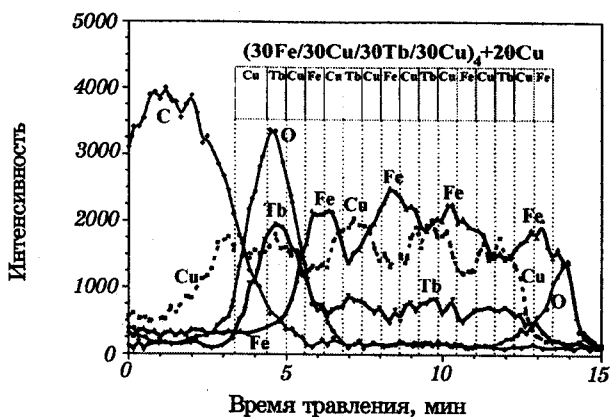


Рис. 1. Профиль концентрации неотожженной структуры $[30\text{Fe}/30\text{Cu}/30\text{Tb}/30\text{Cu}]_4/20\text{Cu}$.

интенсивности оже-пиков для каждого из элементов в зависимости от времени травления. Сравнивая это время с временем напыления каждого из слоев при известной скорости напыления, можно вычислить распределение элементов по толщине пленочной структуры.

На рис. 1 приведен профиль концентрации элементов в неотожженной многослойной структуре, в котором достаточно четко различаются пики каждого из элементов, отображая слоистость структуры пленки. В приповерхностном слое в области защитного слоя меди присутствует достаточно большое количество углерода. Однако в глубине пленки углерод не наблюдается, что свидетельствует о его адсорбировании из атмосферы. Кислород присутствует в приповерхностных слоях, где он сосредоточен лишь в области первого со стороны поверхности слоя тербия, а также в области подложки, что может свидетельствовать о ее недостаточной очистке перед напылением. Кроме того, интенсивность сигнала от ближайшего к поверхности слоя тербия значительно превышает интенсивности глубинных слоев, что свидетельствует о его частично окисленном состоянии. Отжиг привел к диффузионному взаимопроникновению элементов и разрушению периодичности структуры (рис. 2).

Трехслойные пленочные структуры, являющиеся главным объектом исследований, представляли собой систему Fe/НМ/Tb, где НМ = Au, Cu. Толщины слоев составляли 8 Å для Fe, 12 Å для Tb и 15 Å для немагнитной прослойки. Пленки напыляли на подложки из монокристаллического кремния высокой чистоты (рис. 3, спектр 5).

Поскольку обычно при оже-травлении захватываются, по

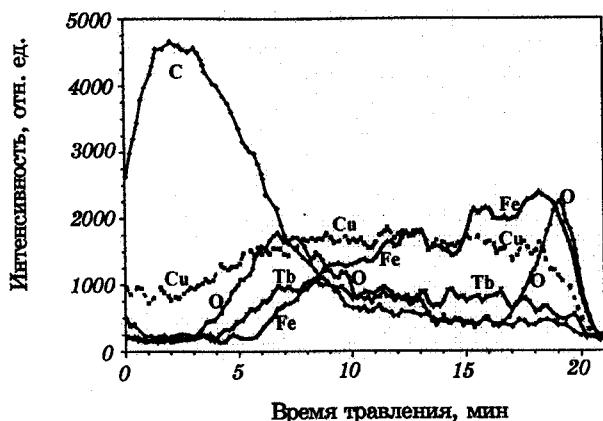


Рис. 2. Профиль концентрации отожженной структуры $[30\text{Fe}/30\text{Cu}/30\text{Tb}/30\text{Cu}]_4/20\text{Cu}$. Отжиг в вакууме на протяжении 30 мин при температуре 250°C .

крайней мере, 15–20 Å материала, а общая толщина исследуемых структур составляет всего 30–40 Å [1], покрытых защитным слоем SiO толщиной 30 Å, то для большей точности оже-исследований был слегка расфокусирован ионный пучок. Это позволило уменьшить скорость стравливания образца и, таким образом, увеличить разрешающую способность по толщине.

Как видно по оже-спектру, отвечающему началу травления (рис. 3, спектр 1), присутствуют пики от кремния и кислорода, что соответствует покровному слою SiO, а также небольшое количество углерода. Наличие углерода и большого количества кислорода является естественным, поскольку образцы некоторое время находились в обычной атмосфере и адсорбировали эти элементы.

После окончания травления покровного слоя появляются пики от всех составляющих исследуемой трехслойной структуры: Tb, Au и Fe (рис. 3, спектры 2 и 3). Наличие одновременно всех составляющих можно объяснить тем, что предпринятых мер для улучшения разрешающей способности метода с целью его адаптации к исследованию ультратонких пленочных структур оказалось недостаточно. Кроме того, близость энергетических спектров Tb и Au в области малых энергий (146 эВ для Tb и 150 эВ для Au) усложнило разделение сигналов от этих металлов. Поэтому о состоянии Tb судили по другим характерным пикам, имеющимся у него в области высоких энергий (933 и 1073 эВ).

Наличие интенсивного пика кислорода одновременно с началом травления трехслойной структуры свидетельствует о частичном окислении Tb. Косвенным подтверждением этого может

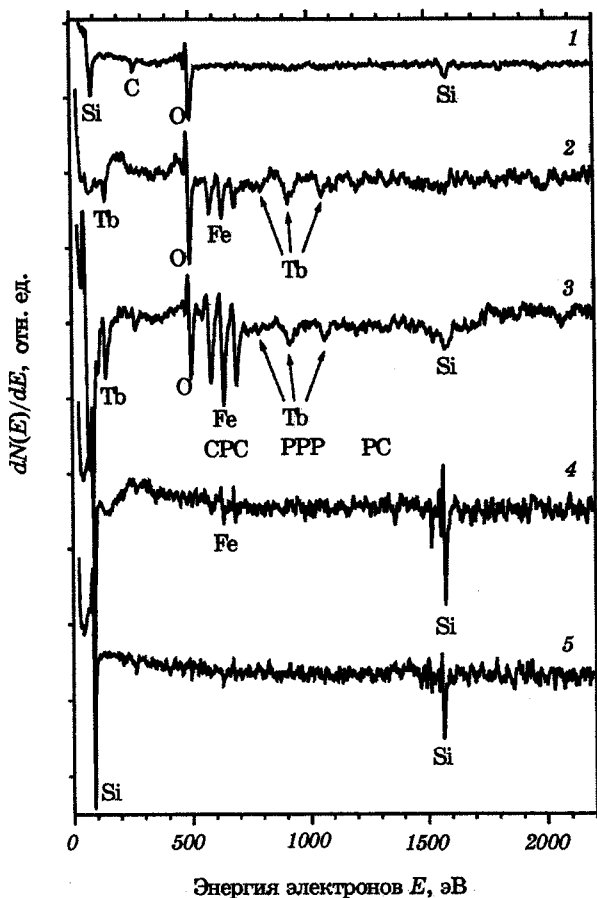


Рис. 3. Оже-спектры пленочного образца Fe/Au/Tb на кремниевой подложке. Спектры 1–5 соответствуют определенным стадиям травления образцов.

служить возросшая в полтора-два раза интенсивность высокоэнергетических пиков тербия. В чистом Tb, как показано в [4, 5], они должны быть в четыре раза меньше по интенсивности по сравнению с низкоэнергетическим пиком. Отметим, что увеличение интенсивности высокоэнергетических пиков указывает лишь на перераспределение энергетических состояний в материале: в виде какого-то соединения либо в состоянии, отличном от нормального.

Практическое исчезновение сигнала от углерода (рис. 3, спектры 2–5) означает, что он присутствовал лишь в покровном слое SiO вследствие адсорбции из атмосферы. Это также подтверждается предварительными исследованиями многослойной структуры. С дальнейшим углублением в исследуемую структуру можно

отметить уменьшение интенсивности пиков Si, однако полностью они не исчезают, поскольку сначала мы имеем сигнал от покровного слоя SiO, а дальше уже проявляется кремниевая подложка.

По мере продвижения к подложке сигнал от прослойки Au постепенно уменьшается до полного исчезновения. Одновременно с нарастанием интенсивности пика от Si также наблюдается уменьшение интенсивности пиков от кислорода вплоть до его полного исчезновения, что свидетельствует об отсутствии кислорода на поверхности и в объеме кремниевой подложки. Наличие же сигнала от Fe после исчезновения сигнала кислорода свидетельствует о том, что часть Fe вступила во взаимодействие с кремниевой подложкой, образовав силицид Fe. Это подтверждается данными рентгеноструктурного анализа, полученными в работе [6].

На этом этапе очень интересным являлось исследование аналогичного образца, но с ультратонким буферным слоем золота на подложке. Как ожидалось, слой золота должен был пассивировать кремниевую подложку и предотвратить образование силицида железа [7]. Однако после травливания трехслойной структуры вместе с буферным слоем наряду с мощным сигналом от кремния все равно оставались заметными слабые пики железа. Таким образом, можно сделать вывод, что одного монослойного слоя золота оказалось недостаточно для защиты слоя железа от взаимодействия с подложкой ввиду островкового характера слоя золота. В то же время даже такой малой толщины буферного слоя оказалось достаточно для значительного улучшения магнитных свойств всей системы [8].

Также провели оже-исследования аналогичной трехслойной структуры, в которой вместо золота была использована медь. Причем толщина буферного слоя была увеличена до 10 Å, а для защиты всей структуры вместо SiO был использован слой меди толщиной 40 Å.

Как видно из рис. 4, принципиальных отличий от результатов исследования системы Fe/Au/Tb нет, за исключением значительно легче различимых сигналов от меди и тербия. Кислород также присутствует по всей глубине пленочного образца, вероятно, по причине недостаточно чистого вакуума или же проникновения кислорода в образцы после их извлечения из вакуума. В пользу предположения о происхождении кислорода в пленочных структурах из атмосферы свидетельствуют приведенные ранее исследования многослойной системы $[\text{Fe}/\text{Cu}/\text{Tb}/\text{Cu}]_4$. В то же время из соотношения низко- и высокоэнергетических пиков Tb можно сделать вывод, что Tb находится в более чистом состоянии. Как и при использовании в качестве буферного слоя Au, применение более толстого слоя Cu не позволило полностью защитить слой Fe от взаимодействия с кремнием. После травливания буферного

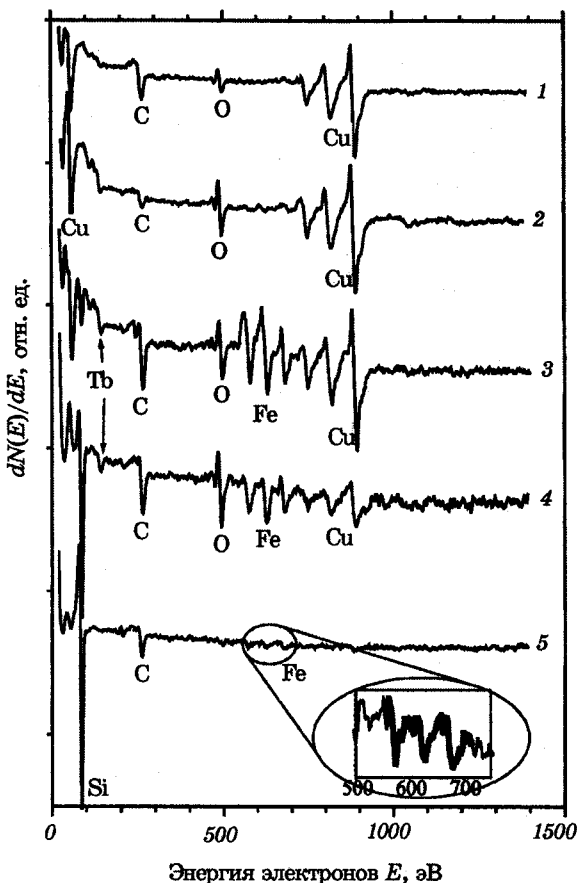


Рис. 4. Оже-спектры пленочного образца Fe/Cu/Tb на кремниевой подложке. Спектры 1–5 соответствуют определенным стадиям травления образцов.

слоя Cu пики Fe остаются заметными (см. выноску рис. 4, спектр 5).

4. ВЫВОДЫ

Показано, что метод оже-спектроскопии пригоден для исследования многослойных ультратонких пленочных структур с толщиной слоев, по крайней мере, 30 Å. При переходе к слоям меньшей толщины разрешающей способности метода недостаточно для разделения отдельных слоев. Несмотря на это, удалось обнаружить проникновение кислорода в пленочные структуры, хотя и покрытые как SiO₂, так и металлическим (медь) защитным слоем. Причем кислород главным образом адсорбируется слоем тербия,

что может повлечь ухудшение его магнитных свойств. Также установлено, что слой железа вступает во взаимодействие с кремниевой подложкой, образуя соединение, которое по данным ранее проведенных исследований [6] является силицидом железа, близким по составу к Fe_3Si . Толщины буферных слоев, использованных для защиты слоя железа, оказалось недостаточно для полного устранения образования силицида. Таким образом, оже-спектрометрию можно использовать, хотя и с определенными ограничениями, для исследования ультратонких пленочных металлических структур.

Авторы выражают благодарность ст. науч. сотр. Института металлофизики им. Г. В. Курдюмова НАНУ П. Г. Яковенко за прецизионный отжиг пленочного образца.

ЦИТИРОВАННАЯ ЛИТЕРАТУРА

1. E. Shypil, A. Pogorilyy, Ye. Pogoryelov et al., *J. Magn. Magn. Mater.*, **242**: 532 (2002).
2. P. Bruno and C. Chappert, *Phys. Rev. B*, **46**: 261 (1992).
3. N. D. Browning, E. M. James, K. Kishida et al., *Rev. Adv. Mater. Sci.*, **1**: 1 (2000).
4. *Handbook of Auger Electron Spectroscopy. Physical Electronics Industries* (Edina: 1972).
5. T. Sekine, Y. Nagasawa, M. Kudoh et al., *Handbook of Auger Electron Spectroscopy* (Tokyo: JEOL Ltd.: 1982).
6. Ye. A. Pogoryelov, V. M. Adeev, and V. I. Bondar, *Proc. of Fourth International Young Scientists Conference 'Problems of Optics and High Technology Material Science'—SPO'2003 (2003, Kyiv)*.
7. F. Zavaliche, W. Wulfhekel, H. Xu, and J. Kirschner, *J. Appl. Phys.*, **88**: 5289 (2000).
8. Ye. Pogoryelov, *Proc. of the International Workshop on Physics and Technology of Thin Films—IWTF2003* (Eds. A. Z. Moshfegh, H. V. Känel, S. C. Kashyap, and M. Wuttig) (Singapore: World Scientific Publ. Co.: 2004), p. 256.